

常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温
クリープに関する研究

A Study on Tensile Creep of Sintered Silicon Nitride
Ceramics at Elevated Temperatures

山口大学大学院理工学研究科

大下 賢一

目 次

第 1 章 緒 論

1-1 本研究の背景	1
1-2 高温化における力学的特性に関する従来の研究	2
1-3 本研究の目的および本論文の構成	4

第 2 章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの突起部付高温引張 クリープ試験片の最適設計

2-1 緒言	7
2-2 供試材料および試験片	8
2-3 解析方法	9
2-3-1 弾・塑性有限要素解析	9
2-3-2 クリープ変形解析	10
2-4 定常クリープ構成式と最適形状試験片の決定方法	13
2-4-1 定常クリープ構成式の決定	14
2-4-2 最適突起部付引張クリープ試験片の決定	21
2-4-3 試験片突起部周辺の節点の動きに基づく変形解析	23
2-4-4 突起部付試験片の形状誤差の検討	26
2-5 引張クリープ試験	30
2-5-1 クリープ試験結果	30
2-6 結言	33

第 3 章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温動クリープ試験

3-1 緒言	35
3-2 供試材料および試験方法	35
3-2-1 供試材料および試験片	35
3-2-2 試験装置	36
3-2-3 試験方法	40
3-2-3-1 試験手順	40
3-2-3-2 レーザ変位計測装置による変位の計測	40
3-2-3-3 動クリープ試験	41

3-3 実験結果	42
3-3-1 測定結果	42
3-3-2 動クリープ曲線	44
3-3-3 繰返し変形過程中的軸方向ひずみ幅の変化	48
3-3-4 静クリープ試験結果との比較	50
3-3-4-1 等価応力の定義	50
3-3-4-2 軸方向定常クリープひずみ速度—等価応力関係	52
3-3-4-3 動クリープ破断寿命の評価	54
3-4 動クリープ解析	57
3-4-1 解析方法	57
3-4-2 定常動クリープひずみ速度の評価	59
3-5 結言	60

第4章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温動クリープ変形過程に 生じる微視的構造変化

4-1 緒言	62
4-2 試験片の構成元素の分析	62
4-3 走査型電子顕微鏡による微視組織の観察	71
4-3-1 観察手順	71
4-3-2 観察結果	73
4-3-3 高温動クリープ特性に及ぼす微視的構造の影響	75
4-4 結言	76

第5章 結論

5-1 突起部付試験片の最適設計手法	77
5-2 動クリープ試験結果	77
5-2-1 動クリープ変位の測定	77
5-2-2 静クリープ試験結果との比較	78
5-3 動クリープ解析	79
5-4 高温動クリープ変形により生じる微視的構造の変化	79
5-4-1 EDSによる試験片の構成元素の分析	79
5-4-2 SEMによる結晶粒径の測定	80
5-4-3 微視的構造変化が高温動クリープ特性に及ぼす影響	80

謝辞	81
--------------	----

参考文献	82
----------------	----

第 1 章 緒 論

1 - 1 本研究の背景

1970 年代の石油危機はエネルギーの重要性を認識させ、同時に新素材に対する関心を呼び起こした。ファインセラミックスは既存材料にはない優れた耐食性、耐熱性および高強度特性を有しているため、高温構造用材料として期待され、1970 年代以降、米国における AGT (Advanced Gas Turbine) 計画、ATTAP (Advanced Turbine Technology Application Project) 計画、日本における高効率ガスタービンムーンライト (ML) 計画等、国の内外において実用製品への用途開発、技術開発等に関するプロジェクトが盛んに進められている。図 1-1⁽¹⁾にファインセラミックスの研究開発の動向を示す。中でも、窒化けい素、炭化けい素などの非酸化物系セラミックスはアルミナ、ジルコニアなどの酸化物系セラミックスに比較して、高温強度、靱性、耐熱衝撃性などをバランスよくもっており、高温構造用材料として可能性が最も期待されている^{(2)~(4)}。

窒化けい素 (Si_3N_4) は六方晶で $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ と $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の二つの形態を有している。この材料の基本的な物性値は、比重 3.2、ビッカース硬さ 19GPa、破壊靱性値 $6\sim 8 \text{ MPa}\cdot\sqrt{m}$ である⁽⁵⁾。また、この材料は 1 気圧では 1840~1880°C で分解し、真空中ではより低温から分解蒸発する欠点を持っている。一方で、破壊靱性値がセラミックスとしては比較的大きいこと、および熱膨張係数が $3.0\times 10^{-6} [\text{1/K}]$ と小さいことから耐熱衝撃性が極めて大きいという利点を有している。

ところで、窒化けい素は本来、難焼結性物質であるため、この材料の実用化のためには焼結助剤組成の探索および焼結法の開発が必要不可欠であった⁽²⁾。これに関して先ず、1961 年に Deeley 等⁽⁶⁾は MgO や Mg_3N_2 を焼結助剤としてホットプレスすることにより、高密度焼結体の製造が可能となることを発見した。その後、Richerson 等⁽⁷⁾は原料を高純度化することによって高強度材料が得られると報告した。さらに、東芝の研究グループ⁽⁸⁾が $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系の焼結助剤が有効であることに注目した。彼等は Si_3N_4

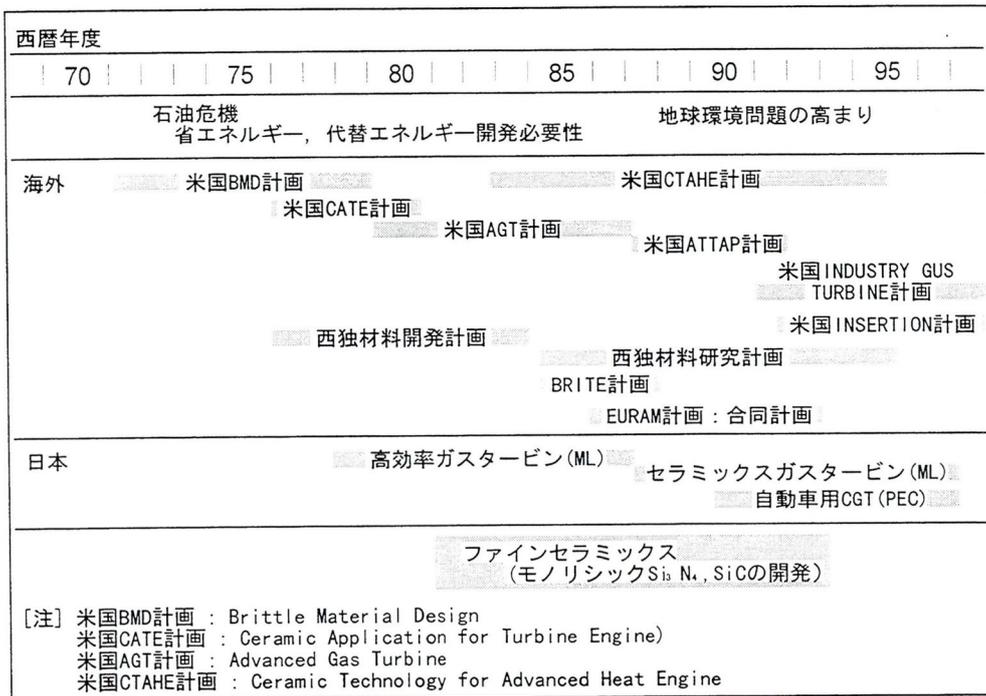


Figure 1-1 Trend in study of engineering ceramics

圧粉体を AlN 粉末で包み，1700℃で予備加熱を行った後に， $Y_2O_3 - Al_2O_3$ を焼結助剤としてホットプレスすると，ガラス相には $Si_3N_4 \cdot Y_2O_3$ （融点 1850℃）という結晶相が生じることを発見した．これにより，強度，特に高温強度が大きく向上した．また，焼結法においても，常圧焼結のほかに，ホットプレス，HIP などが開発された^{(9)~(11)}．これらの焼結助剤および焼結法の発見が，この材料の強度を飛躍的に向上させ，今日の高強度セラミックス開発の端緒となっている．近年においては，更なる高靱性化および高強度化，また，この材料に要求されているもう一方の特性である高信頼性化および低コスト化を狙って様々な研究が行われている^{(12),(13)}．

1 - 2 高温下における力学的特性に関する従来の研究

セラミックスが高温構造用材料として使用されるためには，この材料の高温下における繰返し疲労，クリープ等に関する実験データを蓄積し，こ

これらのデータに基づいて寿命予測を行う設計手法を確立する必要がある。それ故、1970年代以降、セラミックスの高温下における力学的特性に関する研究が数多くなされている。

セラミックスの高温下における力学的特性に関する理論的な研究としては、先ず、Evans⁽¹⁴⁾の研究が挙げられる。EvansはSlow Crack Growth (SCG)によって進展する高温疲労き裂は応力拡大係数Kによって整理できることを示し、この現象に基づきセラミックスの疲労寿命を静クリープ試験結果より予測できることを示した。さらに、Trantina⁽¹⁵⁾は三点曲げ疲労試験に対しても同じ寿命予測式が適用できることを示した。また、JackLin等⁽¹⁶⁾はこの寿命予測式を台形波形による疲労試験に拡張した。

一方、セラミックスの高温クリープに関する研究も数多くなされている^{(17)~(28)}。Kossowsky等⁽¹⁷⁾は窒化けい素セラミックスのクリープ曲線は金属材料と同様、遷移クリープ、定常クリープおよび加速クリープの3つの領域からなり、定常クリープ領域において定常クリープひずみ速度と負荷応力との間に応力べき乗則が成立することを示した。さらに、クリープ変形は結晶粒界のすべりによって生じることを指摘した。また、Ferber等⁽¹⁸⁾は試験温度の増加とともに破壊形態はSCG支配からクリープ損傷支配へ移行することを示した。一方、梶田等⁽²¹⁾は、結晶粒界が結晶相で形成された窒化けい素セラミックスにおいては、クリープ試験中、粒界き裂成長が抑制されるだけでなくクリープ変形時のキャビティの生成が抑制されるために、結晶粒界が非晶質で形成される窒化けい素セラミックスに比較して、クリープ強度が大きく向上することを示した。

ところで、窒化けい素セラミックスは独特の柱状結晶と粒界ガラス相から構成されており、高温下における破壊形態は粒界ガラス相の軟化現象に伴う粒界破壊であることが広く知られている⁽²⁹⁾。このため、この材料の高温特性は粒界ガラス相の特性により極めて大きく影響される。そこで、高温下における窒化けい素セラミックスの変形および破壊挙動を、透過型電子顕微鏡 (TEM) 等による微視的な観察結果を通じて調べた研究報告もなされている^{(17),(30)~(33)}。

Bodur等⁽³¹⁾は非晶質粒界相が1150~1250℃における高温保持中、結晶

化し、これに伴い、この材料の高温クリープ強度が増大することを示した。河本等⁽³²⁾は高温保持により、結晶粒界に存在する微量元素が表面に拡散して SiO_2 の凝固温度を低下させるため、表面近傍にはガラス質が増し、この領域に破壊源となり得るピットが発生し易くなると報告した。また、尹等⁽³³⁾は結晶粒径が増大するほど、遷移クリープ領域が長くなるとともにクリープひずみ速度は減少することを示した。

1 - 3 本研究の目的および本論文の構成

上述したように、セラミックスを高温構造用材料として実用化するためには、この材料の高温下における力学的特性を正確に把握する必要がある。特に、セラミックスは金属材料と同様にクリープ変形を生じることが知られており、これを解明することはこの材料の高温下における重要な研究課題のひとつである。そこで本研究室では先に、突起部を持つ試験片を一体加工し、高温クリープ変形に伴って生じるその突起部間の距離の変化をレーザ変位計測装置を用いて非接触的に測定する手法を提案した⁽¹⁹⁾。しかし、この手法においては、試験片に設けた突起部の付け根において応力・ひずみ集中が生じるため、この試験片から得られるクリープ特性は平滑試験片から得られるそれとは異なることが予想される。

ところで、実際の構造物においては静的な荷重のみが加わることは稀であり、これは平均応力と同時に繰返し応力を受けるのが普通である。このため、セラミックスを高温構造用材料として実用化するためには、この材料の静クリープ特性のみならず、変動荷重に対するクリープ特性を把握しておくことがより一層重要な問題となる。しかしながら、高温下でこのような負荷を受けるいわゆる動クリープ負荷下のセラミックスに関する研究は国の内外においてほとんどなされていない^{(34)~(38)}。

そこで、本研究では先ず、有限要素法による定常クリープ解析を実施し、窒化けい素セラミックス試験片の形状がクリープ試験結果に及ぼす影響について検討した。さらに、この結果に基づき、突起部付試験片の最適設計手法を示した。そしてこの試験片を用いて常圧焼結窒化けい素セラミック

スの高温引張動クリープ試験を実施した。試験においては最大応力および応力速度を制御し、応力波形として三角波を採用した。その際、レーザ変位計測装置を用いて試験片に生じる微小動クリープ変位の測定を行った。さらに、得られた動クリープ試験結果と先に本研究室で得た静クリープ試験結果⁽¹⁹⁾との比較、有限要素法による動クリープ解析、走査型電子顕微鏡および透過型電子顕微鏡による微視組織の観察、およびエネルギー分散型 X 線分光装置による試験片構成元素の分析を通じて、常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温クリープに関する総合的な評価を試みた。

本論文の構成は以下に示すとおりである。

第 1 章において、先ず本研究の背景と、これに関連する従来の研究について述べた。次に、本研究で展開した研究の概要を述べた。最後に、本研究の目的および本論文の構成について記述した。

第 2 章において、突起部付高温引張クリープ試験片に対する有限要素法による定常クリープ解析を実施し、突起部付試験片を用いて窒化けい素セラミックスの定常クリープ構成式を決定する手法およびこの構成式を用いて最適な突起部付高温引張クリープ試験片の形状および寸法を決定する手法を提案した。さらにこのとき決定した突起部付試験片を用いて、1375℃の試験温度下で窒化けい素セラミックスの引張クリープ試験を実施し、試験片に生じるクリープ変位の計測を行った結果について述べた。

第 3 章において、1300℃の温度下で常圧焼結窒化けい素セラミックスの引張動クリープ試験を実施し、レーザ変位計測装置により動クリープ変位の計測を行った結果について述べた。また、得られた動クリープ試験結果と先に本研究室で得た静クリープ試験結果⁽¹⁹⁾を比較することにより、窒化けい素セラミックスの動クリープ特性に検討を加えた。さらに、突起部付試験片の有限要素法による動クリープ解析を実施することにより、1300℃における常圧焼結窒化けい素セラミックスの定常動クリープ変形過程に検討を加えた。

第 4 章において、常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温動クリープ変形により生じる微視的構造の変化について考察した結果を述べた。まず、エネルギー分散型 X 線分光装置 (EDS) を用いて、動クリープ試験前後に

おける試験片の構成元素を調べた。さらに、走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて、動クリープ試験前後の試験片における微視構造の観察を行い、これらと動クリープ特性との関係について論じた。

第5章は、第2章から第4章で得られた結果を要約した結論である。

第2章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの突起部付 高温引張クリープ試験片の最適設計

2-1 緒言

これまでに高温下でセラミックスに生じる微小クリープ変位を測定するためのいくつかの方法が提案されている^{(17)~(28)}。その一つに、突起部を持つ試験片を一体加工し、高温クリープ変形に伴って生じるその突起部間の距離の変化をレーザ光線等を利用して非接触的に測定する手法^{(19),(27),(28)}がある。この手法においては突起部の付け根において生じる応力・ひずみ集中のため、この試験片から得られるクリープひずみは突起部を持たない平滑試験片から得られるそれとは異なることが予想される。

著者らは先に、ある寸法を有する突起部付試験片に対して、高温引張クリープ試験および有限要素法による定常クリープ解析を実施した⁽¹⁹⁾。そして、突起部付試験片の突起部付け根に生じるクリープひずみ速度は試験片中心軸部分の低いクリープひずみ速度域における変形に拘束され、突起部付け根において生じる応力・ひずみ集中がクリープひずみ速度の測定結果に及ぼす影響は予想される値より大きく抑えられることを示した。この現象を利用すると、突起部付け根における応力・ひずみ集中の影響の補正を必要としない高温クリープ用突起部付試験片の設計が期待できる。

そこで本章では、有限要素法による定常クリープ解析を実施し、突起部付試験片の形状がクリープ試験結果に及ぼす影響について検討した。また、この結果に基づき、突起部付試験片を用いて窒化けい素セラミックスの定常クリープ構成式を決定する手法およびこの構成式を用いて最適な突起部付高温引張クリープ試験片の形状および寸法を決定する手法を提案した。さらに、このとき決定した突起部付試験片を用いて、1375℃の試験温度下で窒化けい素セラミックスの引張クリープ試験を実施し、このとき試験片に生じるクリープ変位をレーザ変位計測装置により計測

した。

2 - 2 供試材料および試験片

供試材料には常圧焼結窒化けい素 (Si_3N_4) セラミックスを用いた。これは Y 系 α -サイアロン粉末および窒化けい素粉末が 40wt.% および 60wt.% の割合になるように湿式ボールミルにより混合した原料粉末を一軸加圧成形後ラバープレスし、この成形体を高周波誘導加熱炉を用いて N_2 ガス雰囲気中、 1750°C 下で 4 時間保持することにより焼結したものである。図 2-1 に本研究で使用した試験片の形状と寸法を示した。ただし、試験片平行部の板幅を $B=3.0\text{mm}$ 、突起部の長さを $L=5.0\text{mm}$ 、突起部付け根の半径を $R=1.0\text{mm}$ および板厚を $t=3.0\text{mm}$ とした。なお、試験片にはレーザ変位計によりクリープ変位を計測する際レーザ光線のターゲットとして機能する突起部が設けてある。

本解析では、図 2-1 に示した試験片の B 、 L 、 R および t を変化させて定常クリープ解析を実施し、それぞれの最適値を決定することを試みた。

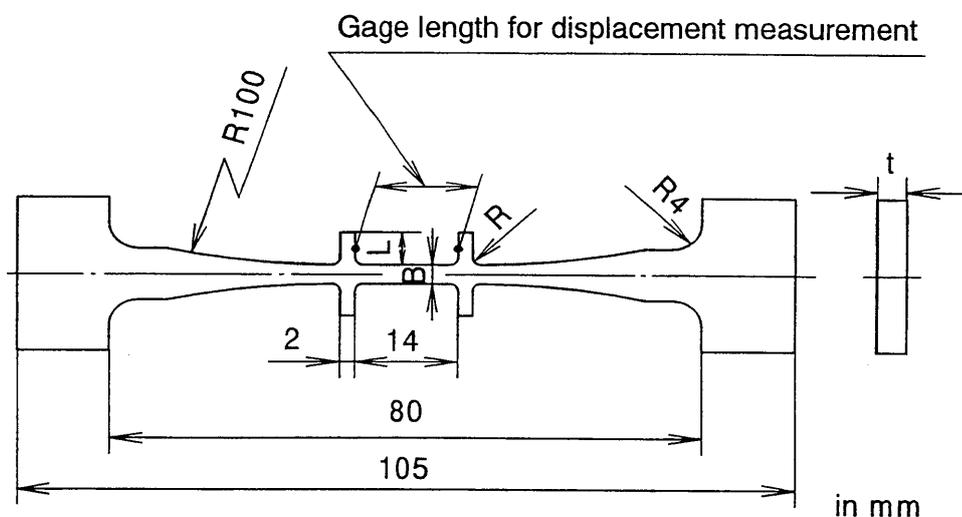


Figure 2-1 Configuration and dimensions of test specimen

2 - 3 解析方法

2 - 3 - 1 弾・塑性有限要素解析

クリープ解析に先立つ弾・塑性解析には、山田らの提唱した弾・塑性有限要素法⁽³⁹⁾を用いた。

これによると、von Mises の降伏条件を塑性ポテンシャル f としたとき、塑性ひずみ増分 $\{d\varepsilon_p\}$ が、

$$\{d\varepsilon_p\} = h \left\{ \frac{\partial f}{\partial \sigma} \right\} df \quad (2-1)$$

により与えられ、また、相当応力が塑性仕事の関数で表されることを仮定すると、応力増分 $\{d\sigma\}$ と全ひずみ成分 $\{d\varepsilon\}$ の関係は次式により与えられる。

$$\{d\sigma\} = [D^p] \{d\varepsilon\} \quad (2-2)$$

$$[D^p] = [D^e] - \frac{[D^e] \left\{ \frac{\partial f}{\partial \sigma} \right\} \left\{ \frac{\partial f}{\partial \sigma} \right\} [D^e]}{1/h + \left\{ \frac{\partial f}{\partial \sigma} \right\} [D^e] \left\{ \frac{\partial f}{\partial \sigma} \right\}} \quad (2-3)$$

本解析ではこの増分関数式に基づいて、区分的線形関係を利用することにより解析を行う、いわゆる接線係数法を採用した。また、荷重増分の制御には r_{\min} 法を用いた。ただし、ここで使用した材料構成式は、引張試験により得られた軸方向公称応力-公称ひずみ関係を本研究室で提案された手法により補正した軸方向公称応力-塑性ひずみ曲線を八つの直線により多段近似したものである。そのため、本解析における r_{\min} の算出方法は一般的な手法と若干異なる。すなわち、各計算ステージにおいて初期荷重増分を加えたとき、以下に示す①および②により得られる r_1 および r_2 の中で最小のものを r_{\min} として採用した。

- ① 弾性状態にある要素については、その要素を降伏させるのに必要な荷重増分の初期荷重増分に対する割合 r_1
- ② 塑性状態にある要素については、その要素の相当応力が、多段近似

した軸方向公称応力－塑性ひずみ関係の八つの領域のうちその要素が属している領域とその次の領域との境界の相当塑性ひずみ値に達するのに必要な荷重増分の初期荷重増分に対する割合 r_2

なお，ポアソン比は室温と同じ 0.25 とした．また降伏応力としては引張試験より得られた応力－ひずみ関係における比例限度を採用した．

2 - 3 - 2 クリープ変形解析

弾・塑性有限要素解析終了後のクリープ変形解析には，状態方程式理論（クリープポテンシャル理論）に基づいた有限要素法⁽⁴⁰⁾を使用した．この理論は，塑性変形におけるポテンシャル理論と類似した考え方によっている．すなわち，クリープポテンシャル f_c の存在を仮定し，クリープひずみ速度 $\{\dot{\varepsilon}_c\}$ を

$$\{\dot{\varepsilon}_c\} = \lambda \cdot \frac{\partial f_c}{\partial \sigma_{eq}} \quad (2-4)$$

で与える．ここで， f_c を von Mises の降伏条件と同じ関数とし，相当応力 σ_{eq} としていわゆる von Mises 形のものを採用すると，式(2-4)は，

$$\{\dot{\varepsilon}_c\} = \frac{3}{2} \frac{\dot{\varepsilon}_c}{\sigma_{eq}} \{\sigma'\} \quad (2-5)$$

となる．従って，微小時間 Δt におけるクリープひずみ増分 $\{\Delta \varepsilon_c\}$ は，

$$\{\Delta \varepsilon_c\} = \frac{3}{2} \frac{\dot{\varepsilon}_c}{\sigma_{eq}} \{\sigma'\} \Delta t \quad (2-6)$$

で与えられる．また，定常クリープ構成式としては次に示す式(2-7)で表現される応力べき乗則を用いた．

$$\bar{\dot{\varepsilon}}_c = K \sigma_{eq}^n \quad (2-7)$$

ここで， $\bar{\dot{\varepsilon}}_c$ は相当定常クリープひずみ速度である．式(2-6)および式(2-7)を組み合わせることにより有限要素解析を行う．ただし，全ひずみ増分 $\{\Delta \varepsilon\}$ は，弾性ひずみ増分 $\{\Delta \varepsilon_e\}$ ，塑性ひずみ増分 $\{\Delta \varepsilon_p\}$ およびクリープひず

み増分 $\{\Delta\varepsilon_c\}$ の和として，

$$\{\Delta\varepsilon\} = \{\Delta\varepsilon_e\} + \{\Delta\varepsilon_p\} + \{\Delta\varepsilon_c\}$$

で与えられるものとする．

本解析全体のフローチャートを図 2-2 に示す．要素分割は対称性を考慮して，試験片の 1/4 部分に対してなされた．図 2-3 に $B=3.0$ ， $L=5.0$ ， $R=1.0\text{mm}$ および $t=3.0\text{mm}$ の試験片形状に対して実施した要素分割を示す．解析では先ず，弾・塑性有限要素解析によりクリープ試験荷重に対

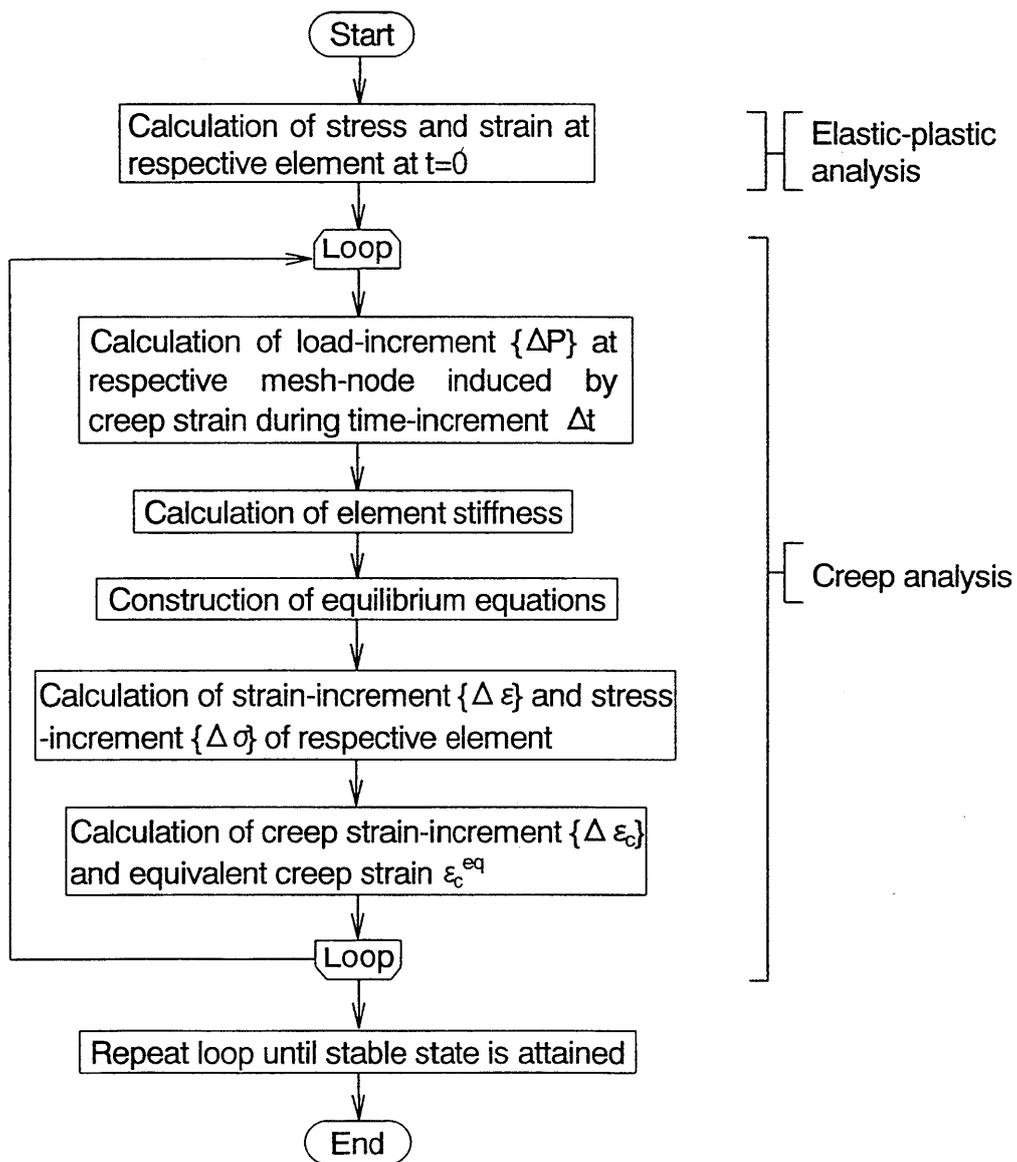


Figure 2-2 Flow chart for calculation of steady state creep deformation

する各要素の弾・塑性応力-ひずみ状態を求める。弾・塑性解析に材料構成式として用いた応力-ひずみ関係を図 2-4 に示した。これは試験温度 1300℃，変位速度 0.06mm/min. の試験条件下で引張試験を行い，得られた軸方向公称応力-公称ひずみ関係を本研究室で提案された手法により補正したものである⁽⁴¹⁾。

弾・塑性解析後，定常クリープ解析を行った。定常クリープ解析は，上述した理論に基づいて以下に示す手順に従って行った。まず，式(2-6)を用いて，微小時間 Δt に対するクリープひずみ増分 $\{\Delta \epsilon_c\}$ を各要素について計算する。この $\{\Delta \epsilon_c\}$ により各節点に生じる見かけの荷重増分を求め，これにより平衡方程式を組み立てる。これを解くことにより，各節点および要素の変位増分，ひずみ増分および応力増分を求める。これらの結果から各要素の相当応力および相当クリープひずみ速度を算出し，これに基づいて同様に次のステップのそれらを計算する。以上の操作を繰り返し行い，時間増分に対する各要素の相当クリープひずみ速度がほぼ一定になったときクリープ変形が定常状態に達したものとみなし，計算

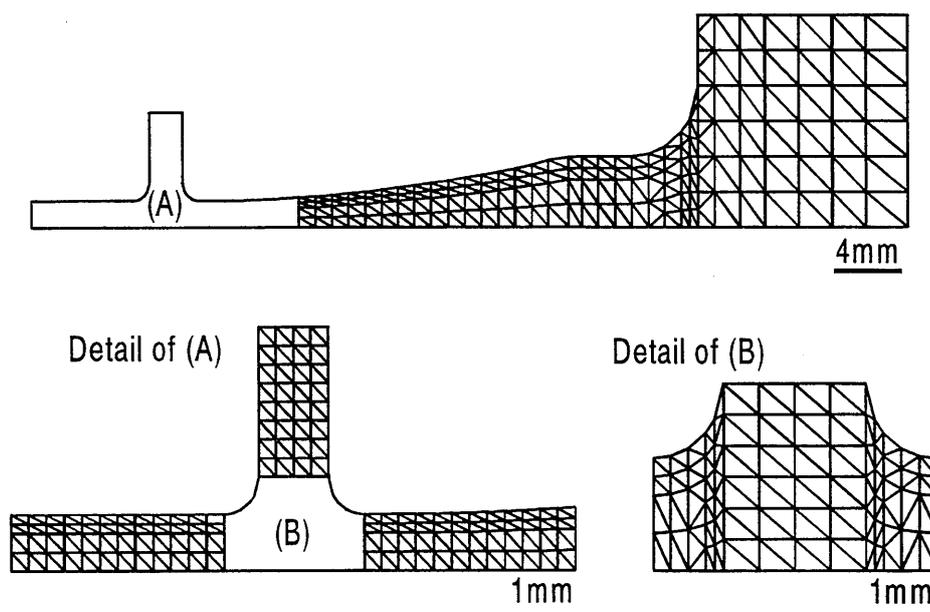


Figure 2-3 Mesh division for FEM calculation of test specimen with width in gauge section $B=3.0\text{mm}$, length of projection $L=5.0\text{mm}$, radius at root of projection $R=1.0\text{mm}$ and thickness $t=3.0\text{mm}$

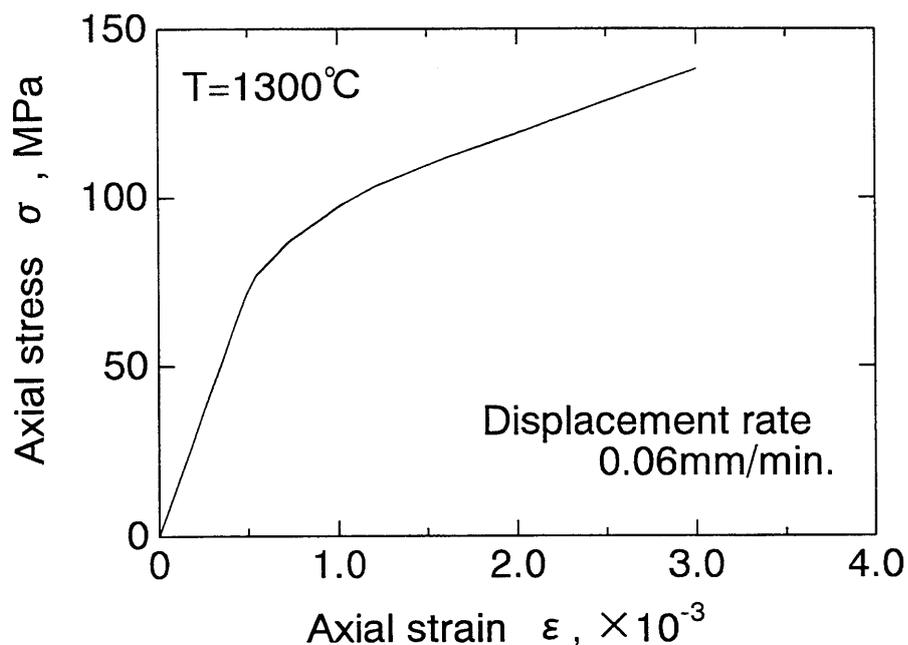


Figure 2-4 Stress-strain curve applied to the elastic-plastic FEM

を終了した。

2 - 4 定常クリープ構成式と最適形状試験片の決定方法

突起部を有する試験片を用いて得たクリープ試験結果には、試験片に設けた突起部付け根で生じる応力・ひずみ集中の影響が含まれている。それ故、一般的にはこの試験片より得た試験結果は正確なクリープ特性を表していない。しかし、先述したように試験片の突起部付け根に生じるクリープひずみおよびその速度は試験片中心軸部分に生じる低クリープひずみ域の変形に拘束されるため大きく抑えられ、試験片に設けた突起部付け根で生じる応力・ひずみ集中がクリープひずみおよびクリープひずみ速度の測定結果に及ぼす影響は極めて小さい。これは実用上十分な精度で高温クリープ構成式を決定できる突起部付試験片の設計が可能であることを示唆している。そこで、突起部付試験片を用いることによるセラミックスの定常クリープ構成式の決定方法と最適な突起部付試験

片を決定する手法を検討した。

2 - 4 - 1 定常クリープ構成式の決定

図 2-5 は定常クリープ構成式を決定するための手順を示すフローチャートである。最初に、任意の形状を有する突起部付試験片を製作し、これを用いて引張クリープ試験を実施する。そして、クリープ試験中、レーザ変位計を用いて図 2-1 に示した突起部内側エッジ間の変位を計測する。これをクリープ試験開始前の突起部間の距離で除すことによりひず

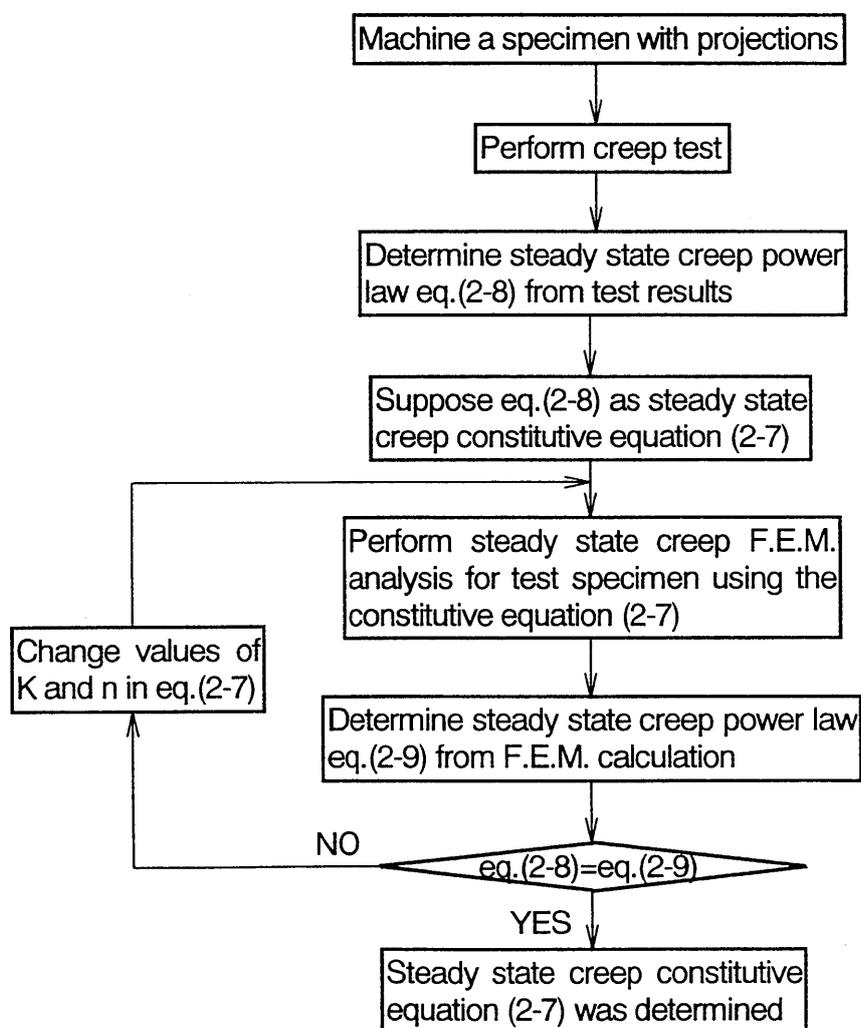


Figure 2-5 Flow chart for determining steady state creep constitutive equation

みを得る．このようにしてクリープ試験中に得た全ひずみから試験荷重負荷直後に生じる初期ひずみを差し引くことにより軸方向クリープひずみ ε_c を得る．さらにこれより得られるクリープ曲線から定常クリープ状態における傾きを求め，これを軸方向定常クリープひずみ速度 $\dot{\varepsilon}_c$ とする．種々の応力の下で実施したこのような引張クリープ試験結果より式(2-8)で表現される応力べき乗則を導出する．

$$\dot{\varepsilon}_c = K_c \sigma^{n_c} \quad (2-8)$$

ここで， σ は軸方向公称応力である．このとき得られた応力べき乗則(2-8)は，突起部付け根の応力・ひずみ集中の影響を含んだ見かけの定常クリープ構成式である．

次に，引張クリープ試験に用いた試験片に対して要素分割を行い，式(2-8)を定常クリープ構成式(2-7)に置き換え，これを用いて有限要素法による定常クリープ解析を実施する[以後，有限要素法に用いた構成式を式(2-7)，クリープ試験より得られる応力べき乗則を式(2-8)とし，両者を区別する]．そして，定常クリープ状態におけるある時間増分 Δt の間にクリープ変位計測点に対応する二つの節点間に生じた軸方向変位増分を求め，さらにこれからクリープひずみ増分を求める．そしてこれを Δt で除すことにより軸方向定常クリープひずみ速度を得る．このようにして得た軸方向クリープひずみ速度と軸方向公称応力との関係を両対数紙上にプロットした結果，応力べき乗則(2-9)が算出される．

$$\dot{\varepsilon}_c = K_c \sigma^{n_c} \quad (2-9)$$

式(2-8)および(2-9)における係数間と応力指数間に， $K_c = K_c$ かつ $n_c = n_c$ が成立するとき，式(2-8)は窒化けい素セラミックスの正しい定常クリープ構成式を表していると考えられる．加えて，式(2-8)を得た試験片を，突起部付け根における応力・ひずみ集中がクリープ変位の計測値に影響を与えない最適な形状を有する突起部付高温引張クリープ試験片と見なすことができる．

先に本研究室では， $B=3.0$ ， $L=5.0$ ， $R=1.0$ および $t=3.0\text{mm}$ の試験片に対し引張クリープ試験を実施し，次の応力べき乗則(2-10)を導いた．

$$\dot{\epsilon}_c = 1.37 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-10)$$

そこで、式(2-10)における $\dot{\epsilon}_c$ を相当クリープひずみ速度 $\bar{\dot{\epsilon}}_c$ に、また σ を相当応力 σ_{eq} に置き換え、有限要素法による定常クリープ解析を実施し、クリープ変位計測点に対応する節点間の変位から軸方向定常クリープひずみ速度を求めた。これより得た軸方向クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_c$ と軸方向公称応力 σ との関係を両対数紙上にプロットした結果を図 2-6 に示す。図 2-6 より、次の関係式が得られる。

$$\dot{\epsilon}_c = 1.36 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-11)$$

式(2-10)および(2-11)の比較より $K_c = K_a$ かつ $n_c = n_a$ が成立することがわかる。このことは、式(2-10)は窒化けい素セラミックスの正しい定常クリープ構成式を、また、 $B=3.0$, $L=5.0$, $R=1.0$ および $t=3.0\text{mm}$ の形状を有する突起部付試験片は最適な高温引張クリープ試験片を与えることを示している。

一方、一般的には $K_c \neq K_a$ かつ $n_c \neq n_a$ であり、式(2-8)は突起部付け根の応力・ひずみ集中に起因する誤差を含んだ応力べき乗則であると考えら

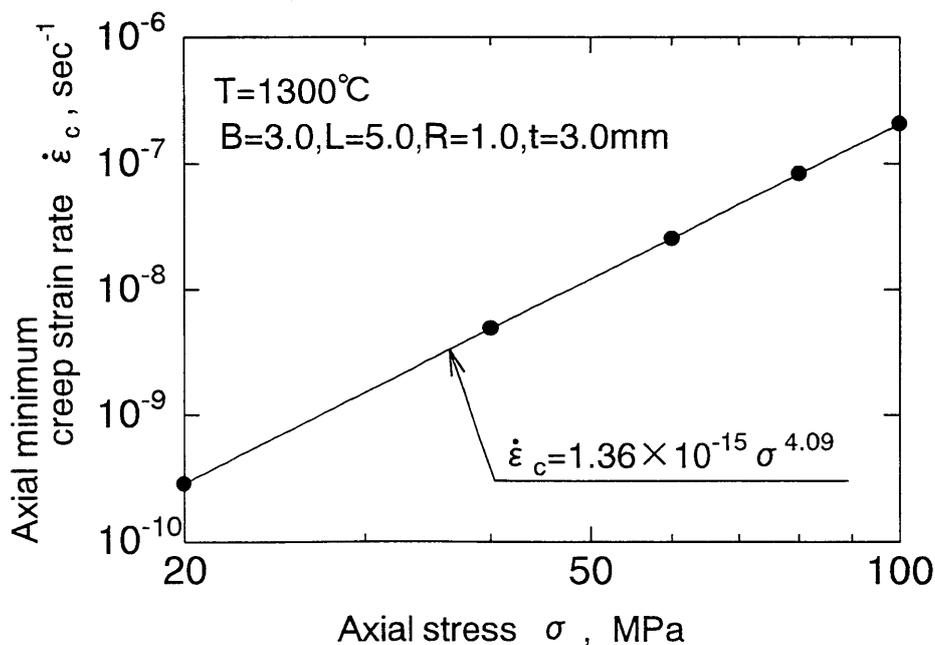


Figure 2-6 Calculated relationship between axial minimum creep strain rate and axial stress

れる。この場合には図 2-5 に従って $K_e = K_a$ かつ $n_e = n_a$ が成立するまで上述した計算を繰り返す。このとき、繰り返し計算回数を減じるため具体的には次の計算手順を採用する。

先ず、 $2.0 \leq B \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $0.5 \leq R \leq 2.0 \text{ mm}$ 、 $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ の範囲の形状を有する試験片を設定する。次に、式(2-7)の K および n にそれぞれ $1.0 \times 10^{-18} \sim 1.0 \times 10^{-13}$ および $3.0 \sim 6.0$ の範囲内の適当な値を与える。そして、これを定常クリープ構成式として、 $2.0 \leq B \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $0.5 \leq R \leq 2.0 \text{ mm}$ 、 $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ の範囲の種々の B 、 L 、 R および t を有する試験片に対して、 $20 \leq \sigma \leq 100 \text{ MPa}$ の範囲の種々の応力の下で有限要素法による定常クリープ解析を実施する。クリープ変位計測点に対応する節点において軸方向変位を算出し、さらにこれから先に述べた方法により軸方向クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_c$ および応力べき乗則(2-9)を得る。なお、このとき設定した試験片形状の範囲は試験装置の制約等を考慮して決定した。一方、式(2-7)の K および n の範囲は他の研究者による 1300°C 付近における窒化けい素セラミックスの引張クリープ試験結果に基づいて上述したように決定した。図 2-7 は有限要素法解析に用いた構成式(2-7)の応力指数 n と、解析により得られた式(2-9)の応力指数 n_e との関係を示している。図 2-7 によると、両応力指数の値はほぼ等しく、両者間の差の n に対する割合は上述した試験片寸法と応力の範囲において 0.15% 以内である。これより、先述した寸法範囲における試験片および応力条件に対しては $n \doteq n_e$ が成立することがわかる。一方、 K に関する計算を実施した結果、 K_a は有限要素法解析に用いた構成式(2-7)における応力指数 n および係数 K に依存して大きく変化し、一般に $K \neq K_a$ となることがわかった。このような計算結果より先述した繰り返し計算に際しては、先ず、 $n = n_e$ とし、係数 K のみ変化させ、 $K_e = K_a$ が成立するまで繰り返し定常クリープ解析を実施すればよいことがわかる。以下に具体的な計算手順を示す。

先述した諸寸法範囲内にある、例えば $B=2.0$ 、 $L=6.0$ 、 $R=1.4$ および $t=3.0 \text{ mm}$ の試験片に対して式(2-10)を定常クリープ構成式として、有限要素法による定常クリープ解析を実施した結果得られたクリープ変位計

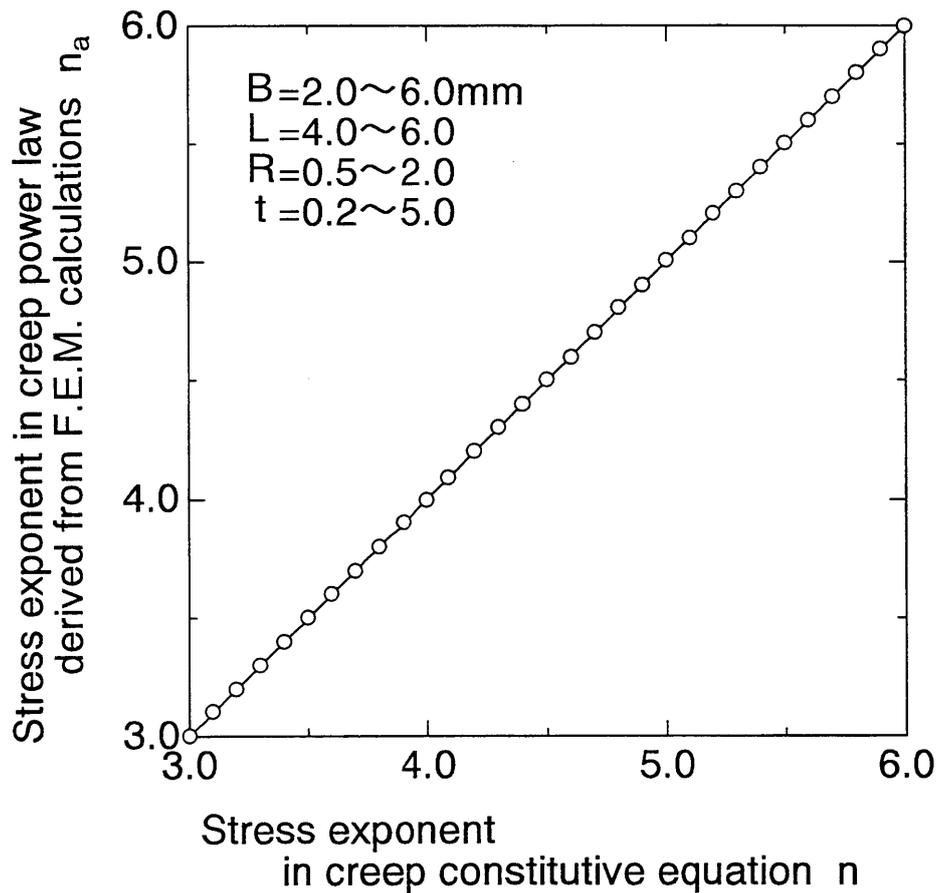


Figure 2-7 Comparison between stress exponent in steady state creep constitutive equation and the one in steady creep power law determined through FEM calculations for specimen with projections, which were performed in the ranges of K from 1.0×10^{-18} to 1.0×10^{-13} and of σ from 20 to 100MPa

測点に対応する節点に関する応力べき乗則は次式で与えられる。

$$\dot{\varepsilon}_c = 1.27 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-12)$$

式(2-10)は本供試材料の正しい定常クリープ構成式と考えられるので、本供試材料から得たこの試験片を用いて実施した引張クリープ試験結果より導出される応力べき乗則は式(2-12)にほぼ等しくなるものと思われる。上述した手順に従い、式(2-12)を $\dot{\varepsilon}_c = 1.27 \times 10^{-15} \sigma_{eq}^{4.09}$ と置き換え、これを定常クリープ構成式として有限要素法による定常クリープ解析を実施した。図2-8に算出された軸方向クリープひずみ速度と軸方向公称応力

の関係を両対数紙上にプロットした結果を○印で示す． 図中， 実線は実験結果を与えらると思われる応力べき乗則(2-12)を示している． 一方， ○印を最小二乗法を用いて直線近似した結果得られた破線は次式で表現される．

$$\dot{\epsilon}_c = 1.17 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-13)$$

式(2-13)は式(2-12)とは異なっている． そこで， $n=4.09$ と固定し， 式(2-12)中の K に種々の値を与え， $20 \leq \sigma \leq 100 \text{MPa}$ の下で有限要素法による定常クリープ解析を実施した． 図 2-9 は有限要素解析に用いた構成式(2-7)の係数 K と， 解析により得られた式(2-9)の係数 K_c との関係を示している． これによると， 両者の関係は $K - K_c$ 線図上で直線となり， $K_c = 1.27 \times 10^{-15}$ に対する係数は $K = 1.37 \times 10^{-15}$ であることがわかる． そこで， 構成式(2-7)において $K = 1.37 \times 10^{-15}$ ， $n = 4.09$ を与え， これを用いて， $B=2.0$ ， $L=6.0$ ， $R=1.4$ および $t=3.0 \text{mm}$ の諸寸法を有する試験片に対し定常クリープ解析を行った． これより得たクリープ変位計測点に

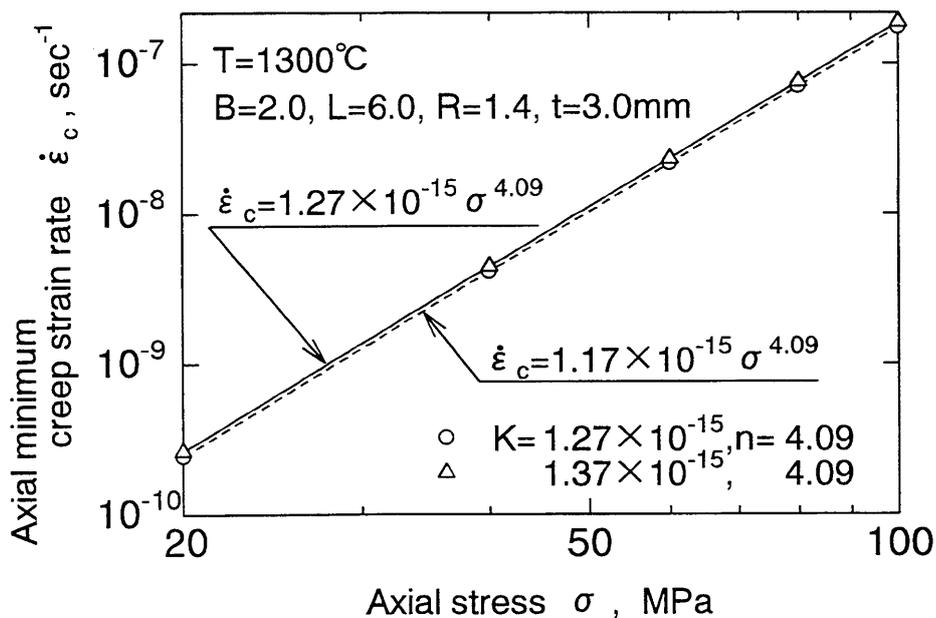


Figure 2-8 Comparison of the constitutive equation (2-12) and the relationship between axial minimum creep strain rate and axial stress calculated through the FEM calculations ($B=2.0$, $L=6.0$, $R=1.4$ and $t=3.0 \text{mm}$)

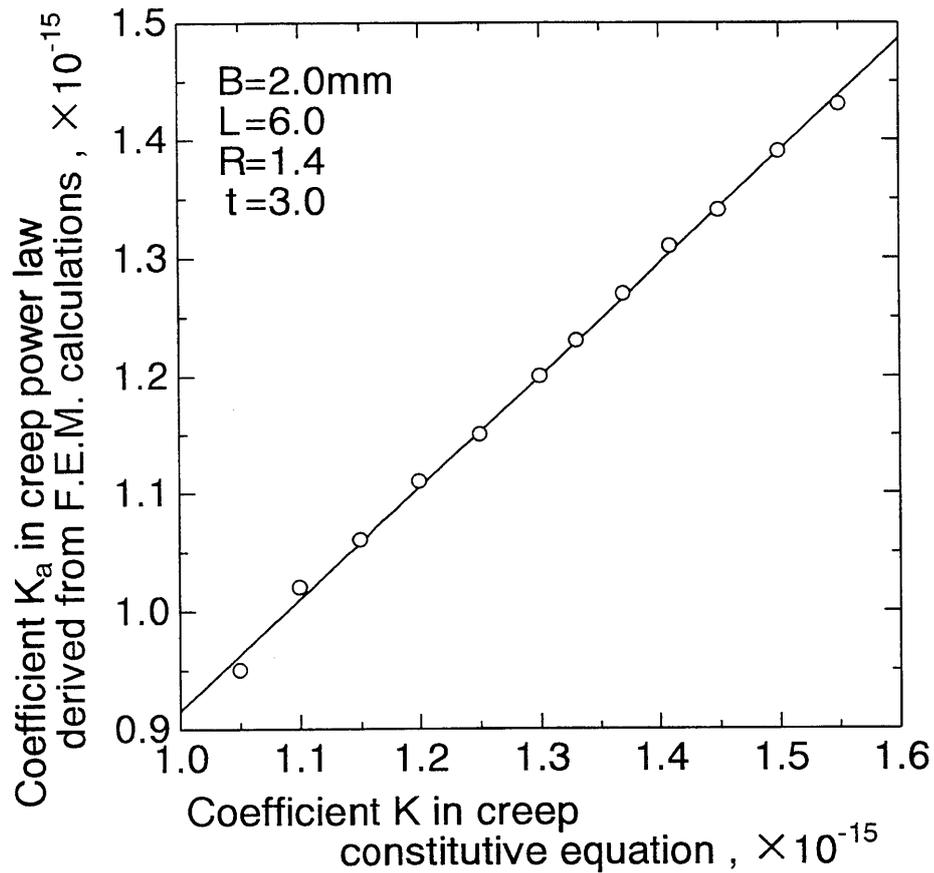


Figure 2-9 Comparison between coefficient K in steady state creep constitutive equation and the one in steady creep power law determined through FEM calculations for specimen with projections, which were performed for $n=4.09$ in the range of σ from 20 to 100MPa

対応する節点における軸方向公称応力と軸方向クリープひずみ速度との関係を図 2-8 中, Δ 印で示す. Δ 印を最小二乗法を用いて直線近似した結果得られた実線は次式で表現される.

$$\dot{\varepsilon}_c = 1.27 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-14)$$

式 (2-14) は式 (2-12) と一致しており, これより窒化けい素セラミックスの正しい定常クリープ構成式は,

$$\bar{\dot{\varepsilon}}_c = 1.37 \times 10^{-15} \sigma_{eq}^{4.09} \quad (2-15)$$

で与えられることがわかる。なお、図 2-9 と同様な直線関係は $2.0 \leq B \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$ 、 $0.5 \leq R \leq 2.0 \text{ mm}$ 、 $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ の範囲の形状を有する試験片および $1.0 \times 10^{-18} \leq K \leq 1.0 \times 10^{-13}$ 、 $3.0 \leq n \leq 6.0$ の K 、 n に対し、 $20 \leq \sigma \leq 100 \text{ MPa}$ の応力の下で成立した。従って、 $K_c = K_c$ を成立させる定常クリープ構成式(2-7)は引張クリープ試験に用いた試験片より得た応力指数 n に対する $K - K_c$ 関係を得ることにより比較的容易に決定できる。

2 - 4 - 2 最適突起部付引張クリープ試験片の決定

図 2-10 は最適な形状を有するセラミックスの高温クリープ試験片を決定するための手順を示すフローチャートである。2-4-1 節で決定した定常クリープ構成式(2-7)を用いて、最適な突起部付高温引張クリープ試験片が次のように決定される。まず、突起部付試験片の形状および寸法を与え、その試験片に対して要素分割を行う。そして、定常クリープ構成式(2-7)を用いて有限要素法による定常クリープ解析を実施することによりクリープ変位計測点に対応する節点に関する応力べき乗則(2-9)を求める。試験片の諸寸法を変化させ、応力べき乗則(2-9)が定常クリープ構成式(2-7)と一致するまでこの操作を繰り返す。両者が一致するように決定された諸寸法を有する試験片が最適突起部付引張クリープ試験片を与える。具体的な計算手順を以下に示す。

まず、仮に $B=2.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=2.0$ および $t=3.0 \text{ mm}$ なる諸寸法を有する試験片を与える。この試験片に対し要素分割を行い、式(2-10)を用いて有限要素法による定常クリープ解析を実施する。なお、式(2-10)は前節で述べたように、本供試材料の定常クリープ構成式を与えると考えることができる。算出された軸方向定常クリープひずみ速度と軸方向公称応力の関係を両対数紙上にプロットした結果を図 2-11 中、○印で示す。なお、実線は式(2-10)で与えられる定常クリープ構成式を示している。○印を最小二乗法により直線近似した結果得られた破線は次式で表現される。

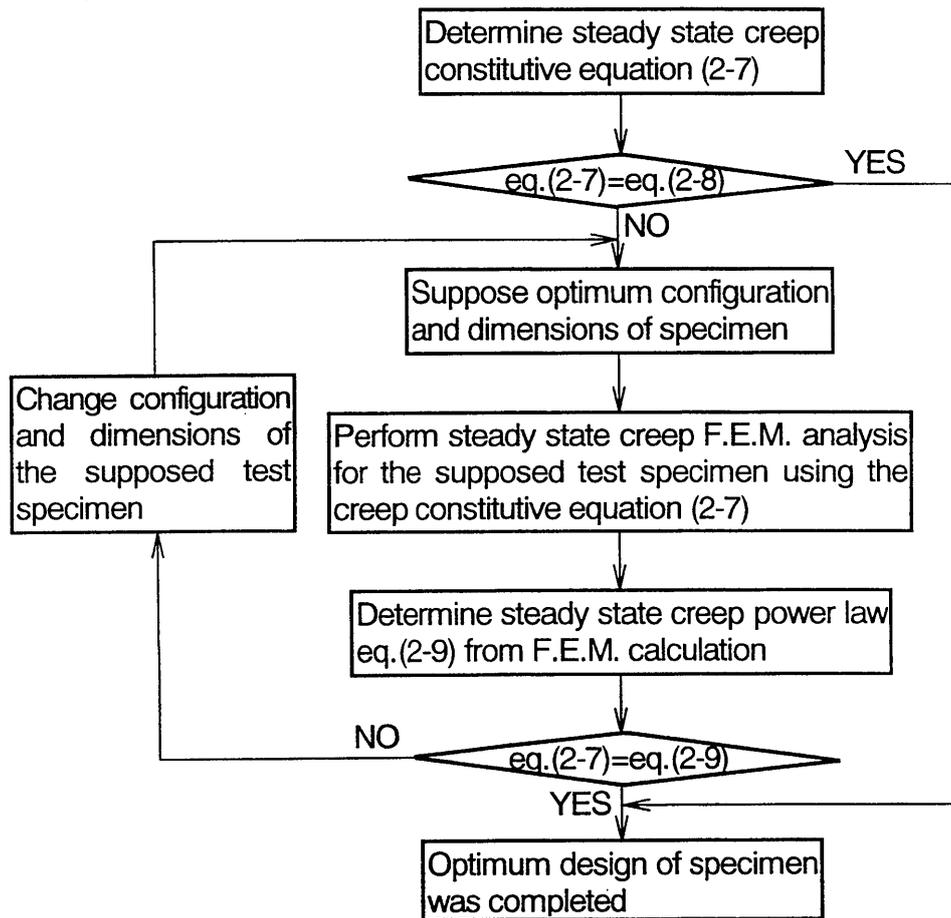


Figure 2-10 Flow chart for determining optimum configuration of tensile creep specimen with projection

$$\dot{\epsilon}_c = 1.16 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-16)$$

式(2-16)は式(2-10)とは異なっている。これは $B=2.0$, $L=5.0$, $R=2.0$, $t=3.0\text{mm}$ の寸法を有する試験片の突起部付け根における応力・ひずみ集中効果に起因している。そこで、 B を変化させ、 $B=4.0$, $L=5.0$, $R=2.0$, $t=3.0\text{mm}$ および $B=6.0$, $L=5.0$, $R=2.0$, $t=3.0\text{mm}$ の形状を有する試験片に対して有限要素法による定常クリープ解析を実施した。これより得たクリープ変位計測点に対応する節点における軸方向公称応力と軸方向クリープひずみ速度との関係が図 2-11 中、 Δ および \square 印で示されている。これらはそれぞれ次式で表現される。

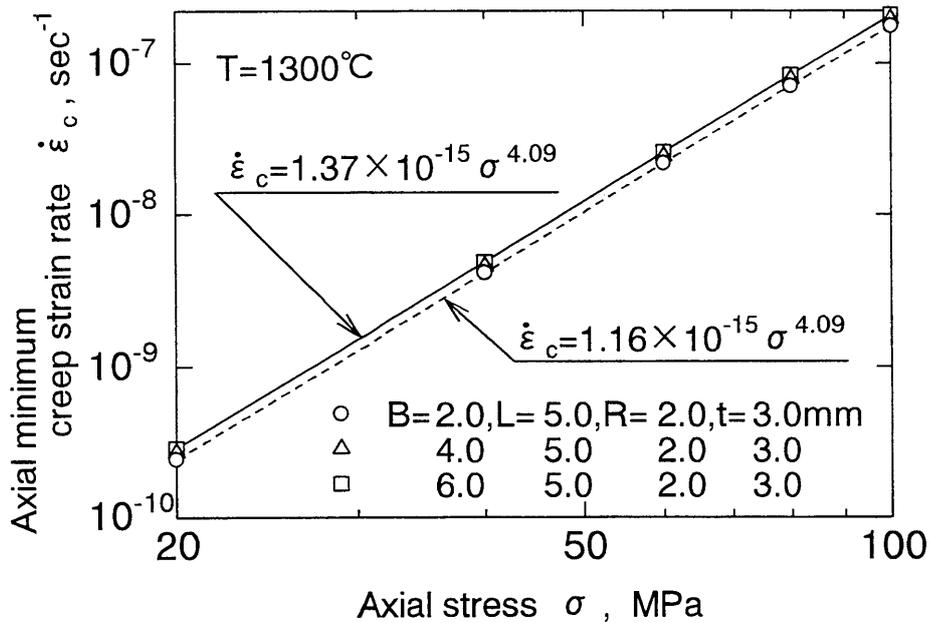


Figure 2-11 Comparison of the constitutive equation (2-10) and the relationship between axial minimum creep strain rate and axial stress calculated through the FEM for specimen with projections using eq.(2-10)

$$\dot{\epsilon}_c = 1.29 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-17)$$

$$\dot{\epsilon}_c = 1.36 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad (2-18)$$

式(2-18)は式(2-10)とほぼ一致しており、 $B=6.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=2.0$ 、 $t=3.0$ mmの形状を有する試験片は、最適突起部付試験片を与えることがわかる。

このように 2-4-1 節に示した $B=3.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=1.0$ 、 $t=3.0$ mm の試験片に加え $B=6.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=2.0$ 、 $t=3.0$ mm の試験片も最適形状高温引張クリープ試験片と見なすことができる。

2 - 4 - 3 試験片突起部周辺の節点の動きに基づく変形解析

前節で決定した二種類の最適形状高温引張クリープ試験片の突起部周辺の変形状態を解析した。図 2-12 は $B=3.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=1.0$ 、 $t=3.0$ mm

なる諸寸法を有する試験片の突起部内側から試験片内部に至る領域の要素分割を拡大して示したものである。なお、図中の三角形要素の頂点が節点である。次に、この図中、試験片中心軸に対して垂直に並んだ列をそれぞれ実線で結んだ結果を図 2-13 に示す。以下に示す観察はこれらの各節点列ごとに行われる。

図 2-14 および図 2-15 はそれぞれ、 $B=3.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=1.0$ 、 $t=3.0\text{mm}$ および $B=6.0$ 、 $L=5.0$ 、 $R=2.0$ 、 $t=3.0\text{mm}$ の諸寸法を有する試験片の突起部付け根周辺における軸方向クリープひずみ速度の、試験片中央部におけるそれからの偏差の分布を示している。これらの図中、左上に試験片の全体図と負荷方向を示した。図 2-14 および図 2-15 はこれらの試験片の黒く塗りつぶした領域に対応している。○印は、解析前(クリープ時間 $t_h=0$)の要素分割における節点位置を表している。試験片中心軸に対して垂直な同一直線上に並んだ○印は破線で結ばれ、節点列を構成している。一方、 $t_h=14.4\text{hr}$ (図 2-14)および $t_h=12.1\text{hr}$ (図 2-15)はそれぞれ定常クリープ状態を示している。このときのクリープひずみ速度差は次のように求められている。2-4-1 節で述べた方法により算出した各節点における軸方向クリープひずみ速度から、定常クリープ構成式(2-10)から得られる試験片平行中央部での軸方向クリープひずみ速度を差し引く。これにより各節点の位置の軸方向クリープひずみ速度差が求められる。そして、この軸方向クリープひずみ速度差を、解析前の節点の位置を軸方向クリープひずみ速度差零とし、引張負荷方向の軸方向クリープひずみ速度差を右方向に■印でプロットする。得られた■印は節点列ごとに実線で結ばれている。

図 2-14 および図 2-15 によると、突起部付け根付近表面層においては、■印は、対応する $t_h=0$ における節点を示す○印に比較して右側に、また試験片中心軸近傍においては、■印は、 $t_h=0$ における節点を示す○印に比較して左側に位置している。これより、突起部付け根表面層における軸方向クリープひずみ速度は試験片中央部におけるそれより大きく、また試験片中心軸近傍における軸方向クリープひずみ速度は試験片中央部におけるそれより小さくなることがわかる。そして、試験片突起部内

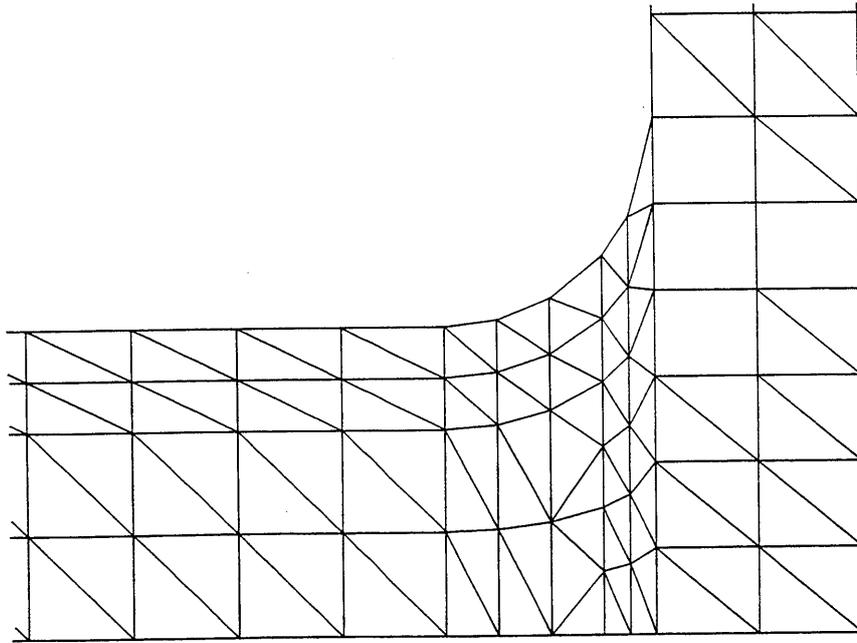


Figure 2-12 Magnification of mesh division around the root of the projection

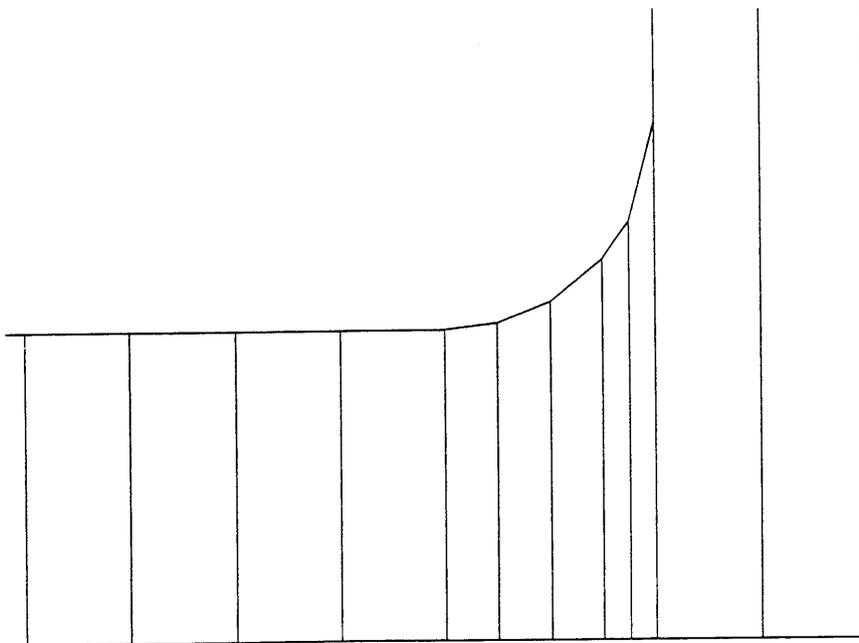


Figure 2-13 Node-row perpendicular to the center axis of the specimen

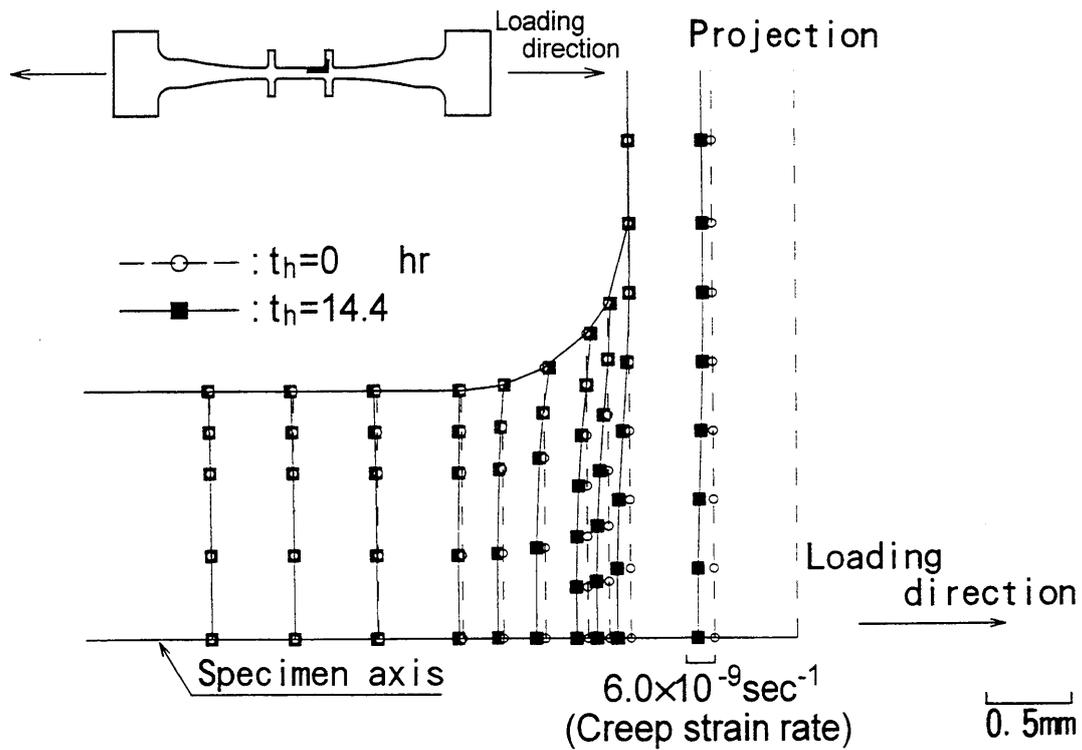


Figure 2-14 Distribution of difference in steady state-axial creep strain rate between at respective mesh-node and at the center in parallel portion calculated through the FEM at $\sigma = 60\text{MPa}$ ($B=3.0$, $L=5.0$, $R=1.0$ and $t=3.0\text{mm}$). The figure corresponds to the blackened portion in the specimen shown in the upper space

側端においては，■および○印はほぼ重なる．これより，試験片突起部内側端に位置する節点の軸方向クリープひずみ速度は試験片中央部における

クリープひずみ速度と一致することが注目される．このように， $B=3.0$ ， $L=5.0$ ， $R=1.0$ ， $t=3.0\text{mm}$ の諸寸法を有する試験片に加え， $B=6.0$ ， $L=5.0$ ， $R=2.0$ ， $t=3.0\text{mm}$ の突起部付き試験片も構成式(2-10)に対応した最適高温引張クリープ試験片を与えることがわかる．

2 - 4 - 4 突起部付試験片の形状誤差の検討

前節において高温引張クリープ試験に最適な二種類の突起部付試験片

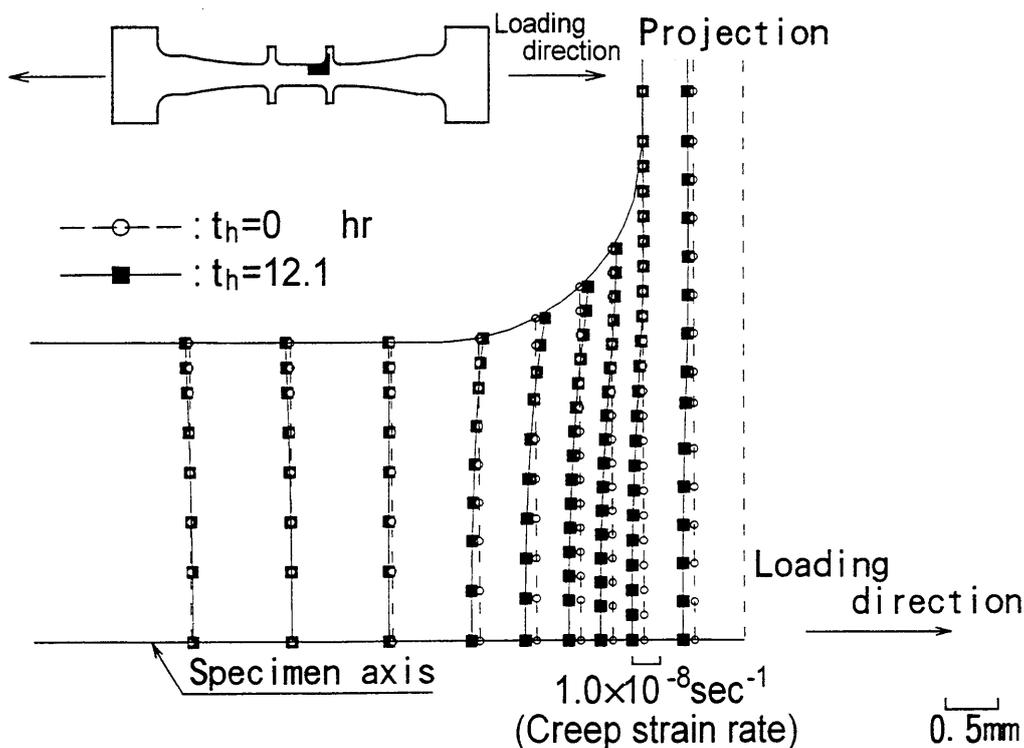
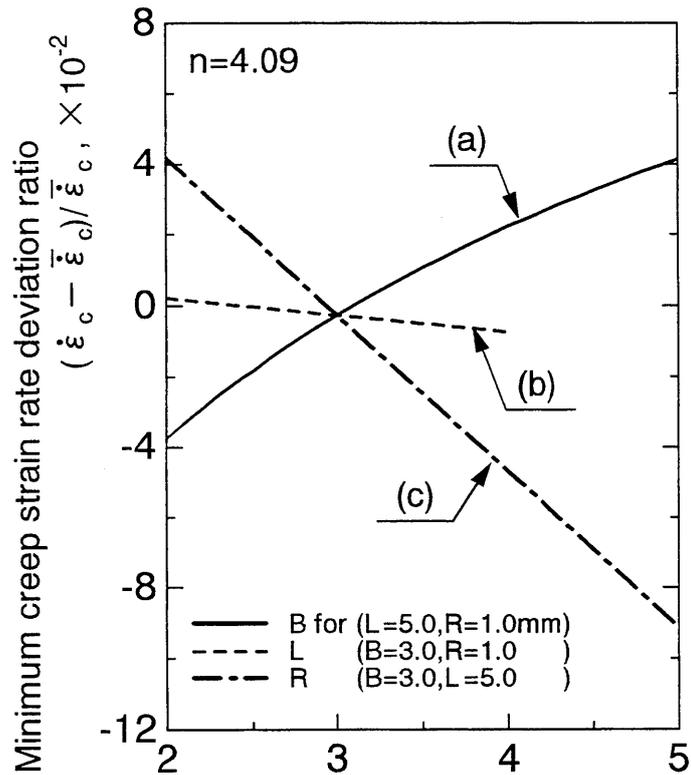
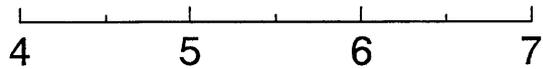


Figure 2-15 Distribution of difference in steady state-axial creep strain rate between at respective mesh-node and at the center in parallel portion calculated through the FEM at $\sigma = 60\text{MPa}$ ($B=6.0$, $L=5.0$, $R=2.0$ and $t=3.0\text{mm}$). The figure corresponds to the blackened portion in the specimen shown in the upper space

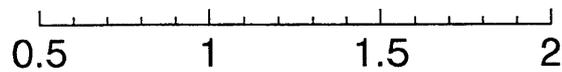
を決定した。ところで、実際に突起部付試験片を設計する際には、計算誤差が避けられない。このため、最適形状高温引張クリープ試験片に近い諸寸法を有する試験片を用いて得られる引張クリープ試験結果にはどの程度、突起部付け根の影響が含まれているか確認しておく必要がある。そこで、先に決定した最適形状高温引張クリープ試験片に許容される試験片寸法誤差の検討を行った。図 2-16 および図 2-17 はそれぞれ、 $B=3.0$, $L=5.0$, $R=1.0$, $t=3.0\text{mm}$ および $B=6.0$, $L=5.0$, $R=2.0$, $t=3.0\text{mm}$ の諸寸法を有する試験片に対し、 B , L および R を変化させたときに生じる軸方向クリープひずみ速度の誤差の変化を次に示す方法により算出した結果を示している。先ず、 B , L および R のいずれか一つを $2.0 \leq B \leq 6.0\text{mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0\text{mm}$, および $0.5 \leq R \leq 2.0\text{mm}$ の範囲で変化させ、



(a) For width in gage length B under the condition fixed at L=5.0 and R=1.0mm , mm

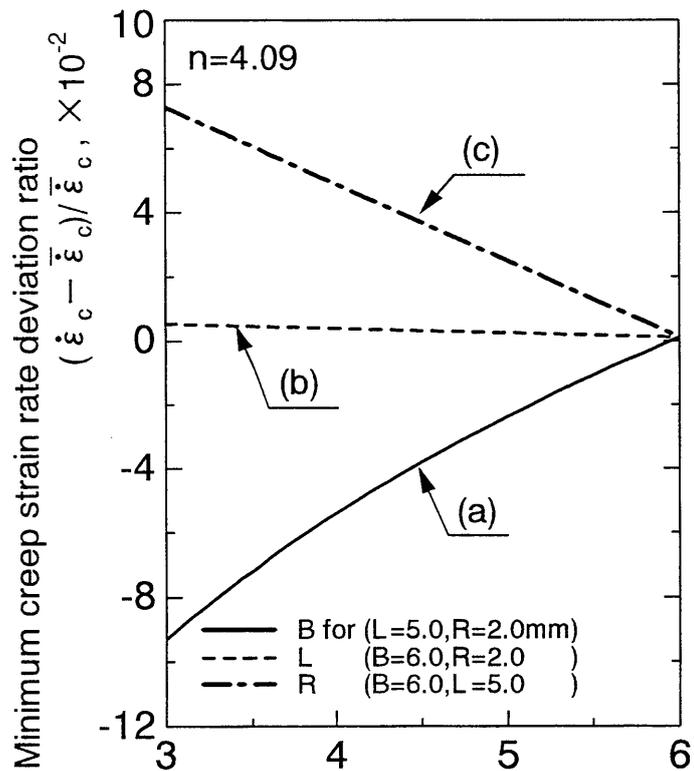


(b) For length of the projection L under the condition fixed at B=3.0 and R=1.0mm , mm

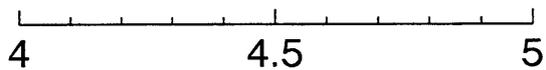


(c) For radius at the root of the projection R under the condition fixed at B=3.0 and L=5.0mm , mm

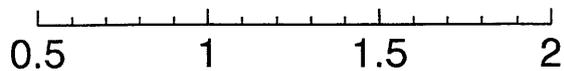
Figure 2-16 Effect of (a) B under the fixed L=5.0 and R=1.0mm, (b) L under the fixed B=3.0 and R=1.0mm, (c) R under the fixed B=3.0 and L=5.0mm, respectively, on creep strain rate deviation ratio, which were calculated in the ranges of K from 1.0×10^{-18} to 1.0×10^{-13} and of σ from 20 to 100 MPa



(a) For width in gage length B under the condition fixed at L=5.0 and R=2.0mm, mm



(b) For length of the projection L under the condition fixed at B=6.0 and R=2.0mm, mm



(c) For radius at the root of the projection R under the condition fixed at B=6.0 and L=5.0mm, mm

Figure 2-17 Effect of (a) B under the fixed L=5.0 and R=2.0mm, (b) L under the fixed B=6.0 and R=2.0mm, (c) R under the fixed B=6.0 and L=5.0mm, respectively, on creep strain rate deviation ratio, which were calculated in the ranges of K from 1.0×10^{-18} to 1.0×10^{-13} and of σ from 20 to 100 MPa

$1.0 \times 10^{-18} \leq K \leq 1.0 \times 10^{-13}$, $20 \leq \sigma \leq 100 \text{MPa}$ の下で有限要素法による定常クリープ解析を実施する。その結果算出されたクリープ変位計測点に対応する節点における軸方向クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_c$ から、定常クリープ構成式 (2-7) より得られる試験片平行中央部での相当クリープひずみ速度 $\bar{\epsilon}_c$ を差し引く。さらに、この差を $\bar{\epsilon}_c$ で除すことにより、クリープひずみ速度の $\bar{\epsilon}_c$ からの偏差割合 $(\dot{\epsilon}_c - \bar{\epsilon}_c) / \bar{\epsilon}_c$ を求め、これを B, L または R に対してプロットする。図 2-16 および図 2-17 によると、定常クリープひずみ速度の偏差割合は B および R に依存して大きく変化している。そして、その変化に及ぼす影響は R の方が B より顕著である。一方、L の変化がこれに与える影響は比較的小さい。今、引張クリープ試験結果より導出される応力べき乗則と正しい定常クリープ構成式との差が $-0.01 \leq (\dot{\epsilon}_c - \bar{\epsilon}_c) / \bar{\epsilon}_c \leq 0.01$ を許容誤差に設定すると、これを満足するために必要な突起部付試験片の許容誤差寸法は $2.76 \leq B \leq 3.47 \text{mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{mm}$, $0.86 \leq R \leq 1.08 \text{mm}$, $0.2 \leq t \leq B \text{mm}$ および $5.34 \leq B \leq 6.0 \text{mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{mm}$, $1.82 \leq R \leq 2.0 \text{mm}$, $0.2 \leq t \leq B \text{mm}$ となる。

2 - 5 引張クリープ試験

2-4 節で、 $B=3.0$, $L=5.0$, $R=1.0$ および $t=3.0 \text{mm}$ の諸寸法を有する突起部付試験片 (図 2-18) は窒化けい素セラミックスの最適形状高温引張クリープ試験片であることを示した。そこで、この試験片を用いて 1375°C の試験温度下で窒化けい素セラミックスの引張クリープ試験を実施した。試験方法に関する詳細は文献 (19) に記述されており、ここではこれに関する記述を省略する。

2 - 5 - 1 クリープ試験結果

図 2-19 に試験温度 1375°C , 軸方向公称応力 $\sigma=130, 140, 150$ および 200MPa の条件下で得られたクリープ曲線を示す。なお、 $\sigma=130 \text{MPa}$ の下でのクリープ試験は試験片が破断する前に中止されている。

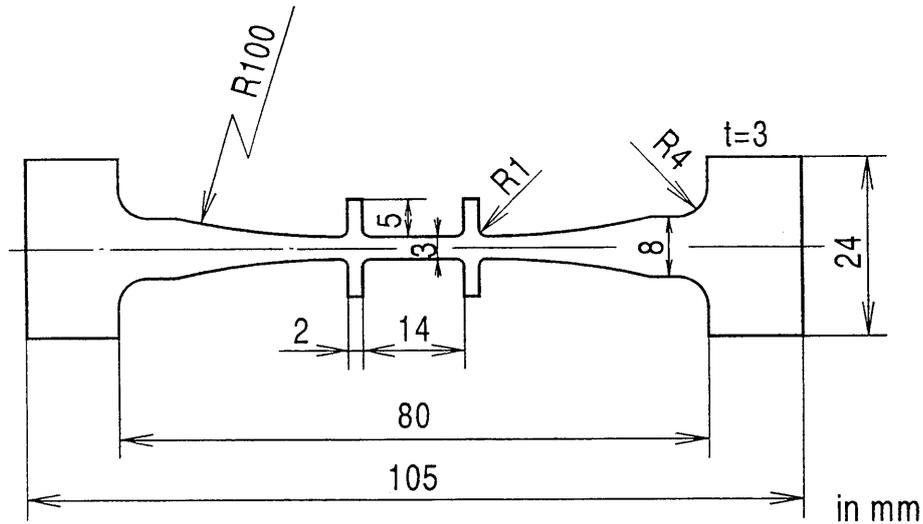


Figure 2-18 Configuration and dimensions of optimal tensile creep specimen (B=3.0, L=5.0, R=1.0 and t=3.0 mm).

図 2-20 は実験より得られた軸方向定常クリープひずみ速度と軸方向公称応力との関係を両対数紙上にプロットした結果を示している。また、実験点を最小二乗法により直線近似した結果を図中に実線で示した。これより、応力べき乗則 (2-8) は次式で与えられる。

$$\dot{\epsilon}_c = 1.13 \times 10^{-24} \sigma^{7.52} \quad (2-19)$$

図 2-21 に、この試験結果をこれまでに 1375℃ 付近の試験温度下で得られている窒化けい素セラミックスの $\dot{\epsilon}_c - \sigma$ 関係^{(17), (19), (22) ~ (24)} とともに示した。図中、●印が本研究で得た試験結果である。また、図の上部に各供試材料を作製する際に添加された焼結助剤を示す。これによると、本研究で得られた応力指数は他の研究者により得られたそれと比較してかなり大きい。この原因の一つとして、本試験が他の研究者によるクリープ試験と比較して高温・高応力域で実施されたことが挙げられる。窒化けい素セラミックスの応力指数は低応力域と高応力域で異なる値を持ち、高応力域における応力指数は低応力域におけるそれより大きいことが指摘されている⁽²³⁾。

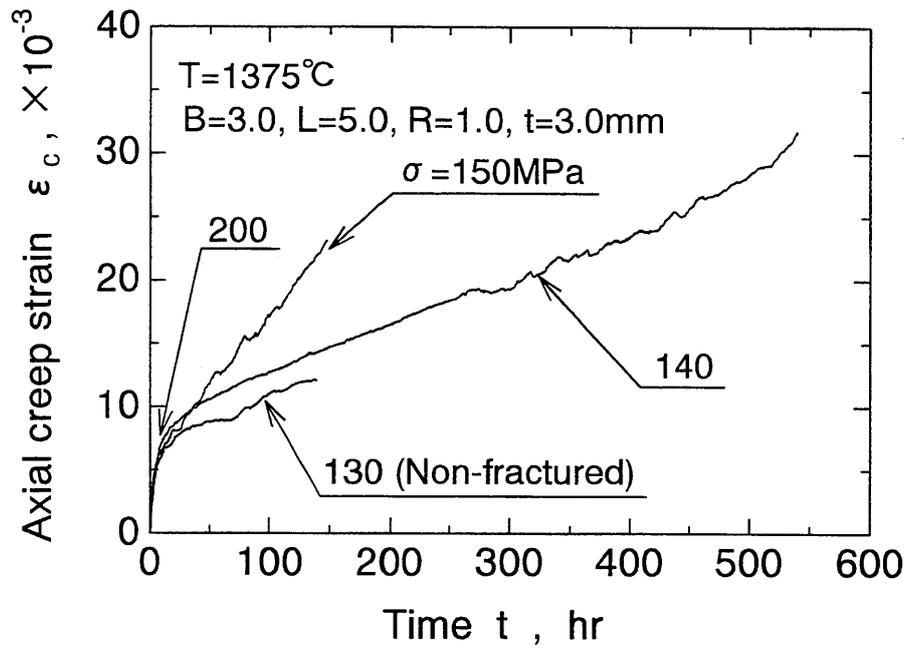


Figure 2-19 Creep curves measured at 1375°C

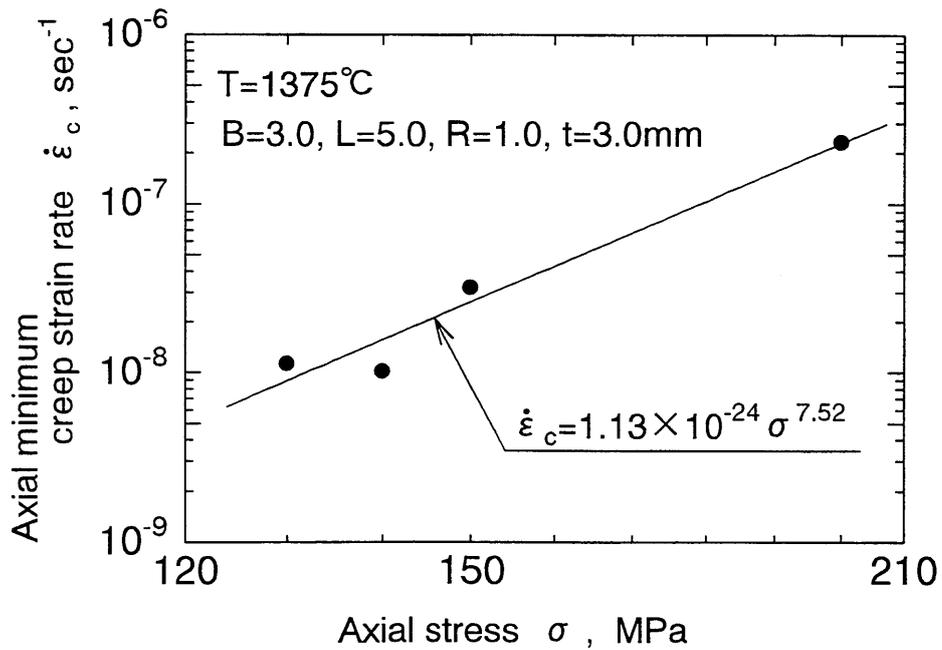


Figure 2-20 Axial minimum creep strain rate plotted against axial stress

Mark	Researcher	The densification aid
●	Author	Y ₂ O ₃ , AlN
○	Hatanaka	Y ₂ O ₃ , AlN
△	Gürtler	Y ₂ O ₃ , MgO
□, ■	Ferber	Y ₂ O ₃
⊙	Tanaka	Y ₂ O ₃ , Al ₂ O ₃
◇	Kossowsky	Unknown

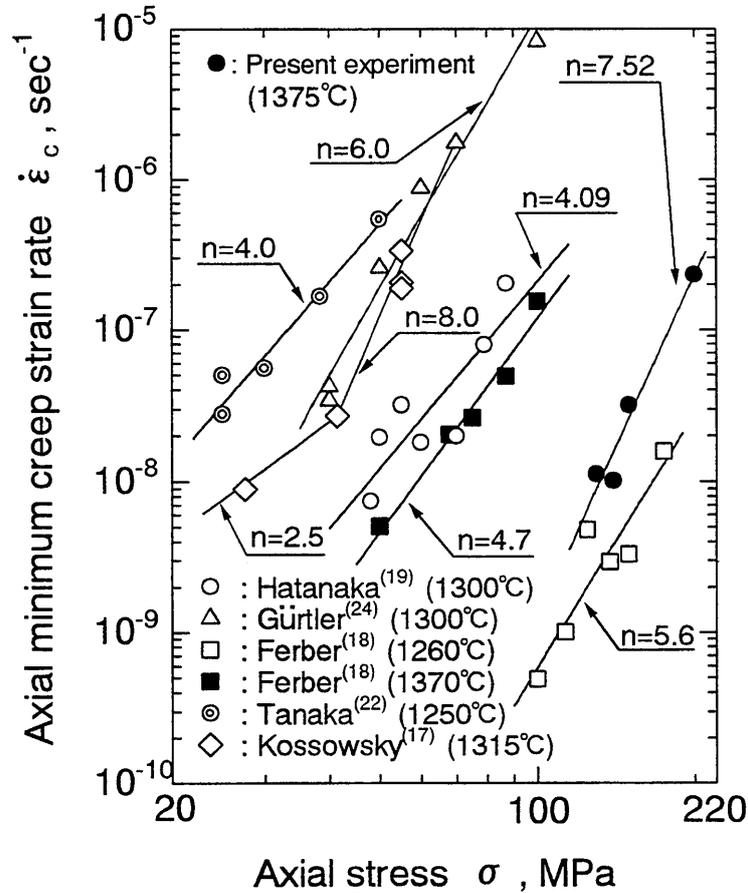


Figure 2-21 Comparison of relationship between axial minimum creep strain rate and applied stress, which were obtained around T=1375°C before now, and the present data.

2 - 6 結 言

突起部を有する窒化けい素セラミックス試験片に対して、高温引張クリープ試験と有限要素法による定常クリープ解析を実施した。そして、セラミックスの正しい定常クリープ構成式および最適な突起部付高温引

張クリープ試験片の形状および寸法を決定する手法を提案した。得られた結果は次のように要約される。

(1) $2.0 \leq B \leq 6.0 \text{ mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$, $0.5 \leq R \leq 2.0 \text{ mm}$ および $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ の寸法範囲の突起部付試験片の高温引張クリープ試験と、その試験より得た定常クリープ則を用いた有限要素法による定常クリープ解析を通じて、突起部の影響を除いた定常クリープ構成式を決定できる。

(2) (1)の寸法範囲と $1.0 \times 10^{-18} \leq K \leq 1.0 \times 10^{-13}$, $3.0 \leq n \leq 6.0$, $20 \leq \sigma \leq 100 \text{ MPa}$ の範囲の定常クリープ構成式に対して突起部付け根に生じる応力・ひずみ集中の効果の補正を必要としない最適形状高温引張クリープ試験片を決定できる。

(3) (2)の手法を用い、 $B=3.0$, $L=5.0$, $R=1.0$, $t=3.0 \text{ mm}$ および $B=6.0$, $L=5.0$, $R=2.0$, $t=3.0 \text{ mm}$ の諸寸法を有する突起部付試験片は常圧焼結窒化けい素セラミックスの最適形状高温引張クリープ試験片であることを示した。

(4) 引張クリープ試験を実施した結果得られる応力べき乗則と窒化けい素セラミックスの正しい定常クリープ構成式との差を $\pm 1.0\%$ の誤差内に収めるために要求される試験片の寸法の許容誤差範囲は $2.76 \leq B \leq 3.47 \text{ mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$, $0.86 \leq R \leq 1.08 \text{ mm}$, $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ および $5.34 \leq B \leq 6.0 \text{ mm}$, $4.0 \leq L \leq 6.0 \text{ mm}$, $1.82 \leq R \leq 2.0 \text{ mm}$, $0.2 \leq t \leq B \text{ mm}$ であることを示した。

第 3 章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの 高温動クリープ試験

3 - 1 緒 言

第 1 章において，高温構造用材料として期待されている窒化けい素セラミックスの高温クリープ特性の解明は実用上極めて重要であり，これまでにもこれに関する様々な研究が行われていることを紹介した．ところで，実際の構造物においては静的な荷重のみが加わることは稀であり，これは平均応力と同時に繰返し応力を受けるのが普通である．このような問題は完全両振応力を受ける疲労強度と，静応力のみを受けるクリープ強度の中間領域を取り扱うもので，高温強度に関する重要な研究課題の一つである．それにも拘わらず，セラミックスのこれに関する研究は国の内外においてほとんどなされていない^{(34)~(38)}．これは，主として 1000℃を超える高温雰囲気中で試験片の変形挙動を精度良く検出することが極めて困難であることに起因している．

そこで本章では，前章で提案した手法により設計した突起部付試験片を用い，1300℃の高温下で常圧焼結窒化けい素セラミックスの引張動クリープ試験を実施した．そして試験中，レーザ変位計測装置を利用した変位計測システム^{(19),(41)}を用いて，試験片に生じる動クリープ変位の計測を行った．また，得られた動クリープ試験結果と先に得た静クリープ試験結果⁽¹⁹⁾を比較することにより，窒化けい素セラミックスの動クリープ特性に検討を加えた．さらに，突起部付試験片の有限要素法による動クリープ解析を実施することにより，1300℃における常圧焼結窒化けい素セラミックスの定常動クリープ変形過程に検討を加えた．

3 - 2 供試材料および試験方法

3 - 2 - 1 供試材料および試験片

供試材料は常圧焼結窒化けい素セラミックスである。これはY系 α -サイアロン粉末および窒化けい素粉末をそれぞれ40wt.%および60wt.%の割合で湿式ボールミルにより混合した原料粉末を一軸加圧成形後ラバープレスし、この成形体を高周波誘導加熱炉を用いてN₂ガス雰囲気中、1750℃下で4時間保持することにより焼結したものである。

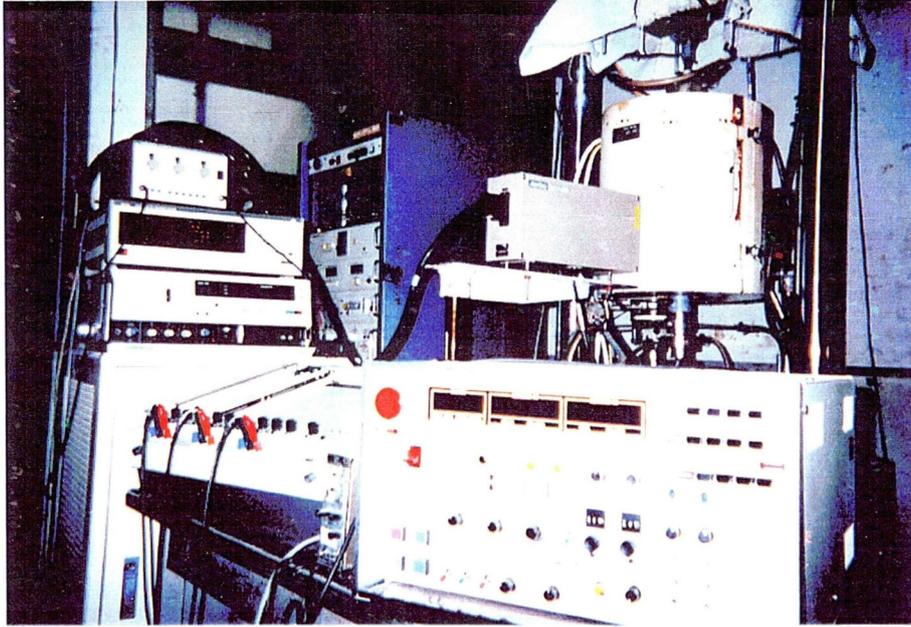
本研究で使用した試験片の形状および寸法は前章で引張クリープ試験に用いたものと同様である。前章において、 $1.0 \times 10^{-18} \leq K \leq 1.0 \times 10^{-13}$ 、 $3.0 \leq n \leq 6.0$ 、 $20 \leq \sigma \leq 100 \text{MPa}$ の範囲の定常クリープ構成式に対してこの試験片を使用し、突起部付け根で生じる応力・ひずみ集中の影響を補正することなしに定常クリープ構成式を決定できることを示した。

3 - 2 - 2 試験装置

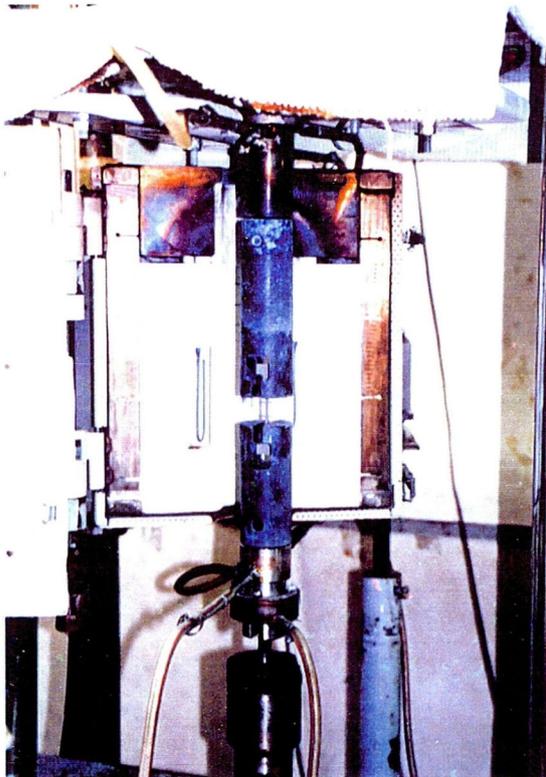
動クリープ試験には著者らの研究室で開発したセラミックス用高温引張試験装置^{(19),(41)}を使用した。図3-1(a)~(c)に本研究室で使用した試験装置の外観、炉内における負荷用治具の装着状況および試験片の取り付け状態を示す。使用した炉はカンタルスーパー33を発熱体とする円筒二分割型高温電気炉[中外エンジニアリング(株)製、炉内最高温度1500℃]である。これを閉ループ型電気油圧式材料試験機[島津(株)製、サーボバルサEHF-EA10型、容量±98kN]に装着した。炉の昇温速度および試験温度を制御するためにはデジタル温度プログラム制御器[真空理工(株)製、HPC-7000]を用いた。

動クリープ試験に使用した試験片の治具への取り付け状態を示す概略図を図3-2に示す。このうち、炭化けい素セラミックス製の試験片装着用治具を図3-3に示す。これらは図3-4に示すNi基超耐熱合金製ロッドを介して、試験機のロードセルおよびアクチュエータへ取り付けられた。試験片装着治具とロッドは、炭化けい素セラミックス製のピンにより連結されている。

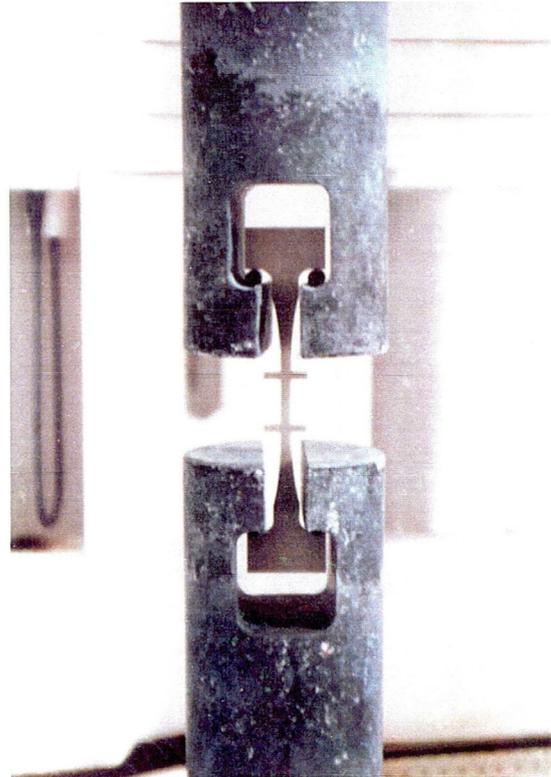
加熱炉は上下方向が外気に開放されているので、炉内の内壁と治具の間にセラミックファイバを充填し、対流による放熱を少なくした。そ



(a) General view



(b) Alignment of jig in dynamic creep test



(c) Setup of dynamic creep specimen

Figure 3-1 Tensile dynamic creep test system

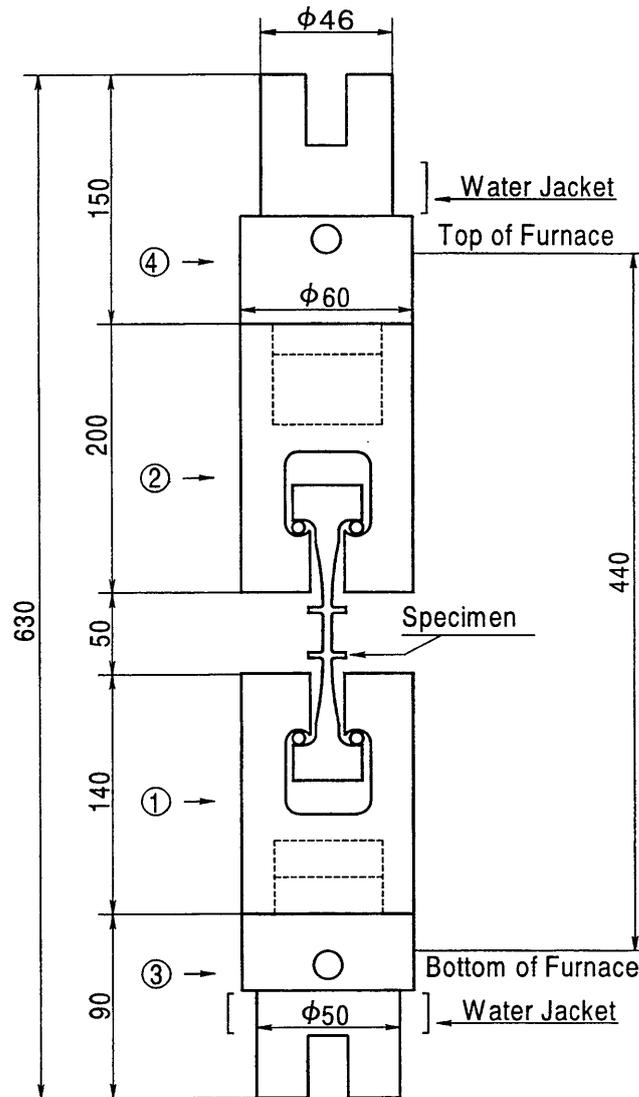


Figure 3-2 Schema of setup of jig and specimen for tensile dynamic creep

の結果，炉内の温度分布は，荷重軸方向には，中心から上下 2.0cm の領域で設定温度の±1%以内，また，荷重軸に垂直方向には半径 1.5 cm の領域で設定温度の±1%以内に収まることを確認した．温度の検出には，太さ 0.5mm の白金-ロジウム熱電対 PR13 を使用した．なお，熱がロードセルおよびアクチュエータに悪影響を与えぬように，上部および下部治具には冷却水を通し，さらにウォータージャケットを装着した．加えて，ロードセルと加熱炉の間に遮断板を設けた．

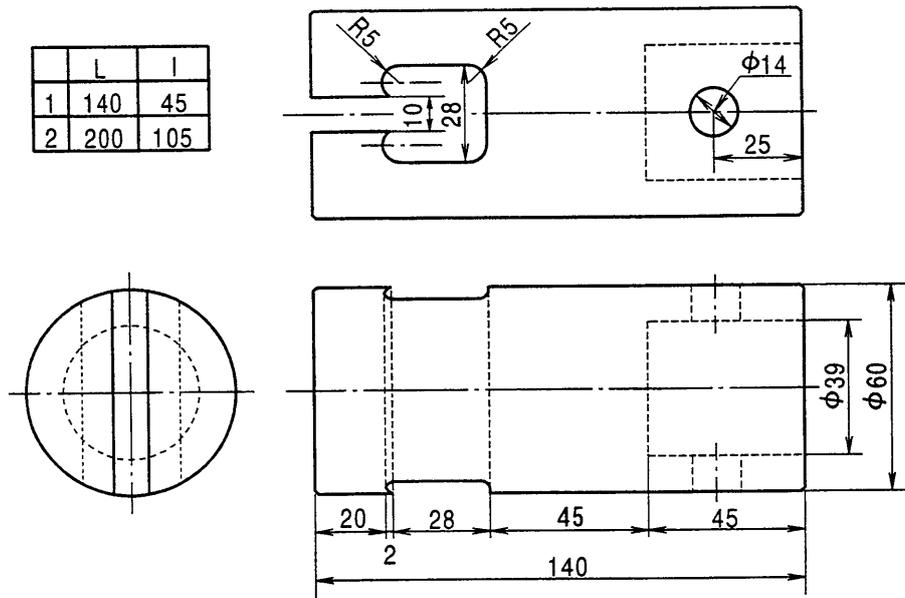


Figure 3-3 SiC jig for tensile dynamic creep

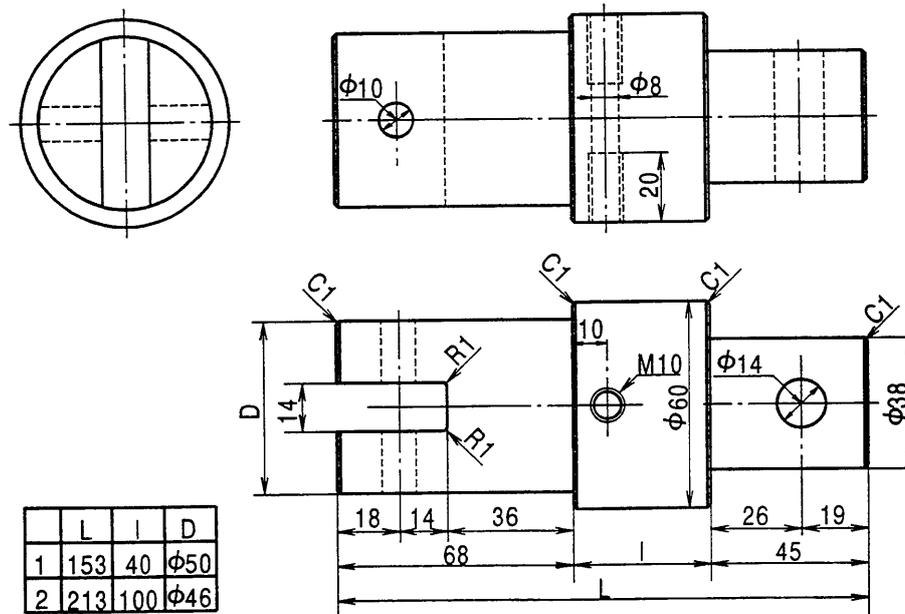


Figure 3-4 Jig for connecting specimen-mounting device with test machine

3-2-3 試験方法

<3-2-3-1 試験手順>

高温下における引張動クリープ試験においては，試験片に曲げひずみを発生させることなく正確な単軸引張荷重を加えることが重要である．そこで，動クリープ試験に先立ち，全ての試験片に対して，試験片平行部の表裏および両側面の計 4 ヶ所にひずみゲージを貼付することにより，室温において試験片に生じる曲げひずみの成分の大きさを調べた．この時，ひずみゲージからの出力は STRAIN AMPLIFIER (DPM-310A) を通して，また荷重は試験機付属のロードセルにより検出し，X-Y レコーダに同時記録した．

なお，曲げひずみ成分 B は，次式により評価した (JIS R1606)．

$$B = \frac{|\varepsilon_{\max} - \varepsilon_{\min}|}{2 \cdot \varepsilon_{\text{ave}}} \times 100 \quad (\%) \quad (3-1)$$

ここで， ε_{\max} は試験片平行部に貼り付けた 4 枚のひずみゲージから得られたひずみのうちの最大ひずみ， ε_{\min} はそのうちの最小ひずみ，および ε_{ave} は平均引張ひずみであり， $\varepsilon_{\text{ave}} = (\varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 + \varepsilon_4) / 4$ で与えられる．試験片の取り付け位置を調整することより，B が 3% 以内になるように軸合わせを行った．その後，空気中にて約 10MPa の予荷重を保ちながら 150℃ /hr で昇温した．設定試験温度に達した後，その温度で 30 分間保持し，それから試験荷重を加えて動クリープ試験を開始した．

<3-2-3-2 レーザ変位計測装置による変位の計測>

高温下での動クリープ試験中，時間の経過に伴って生じる試験片の微小変位を測定するため，レーザ変位測定装置 [アンリツ(株)製，M552ADH 型，He-Ne ガスレーザ，定格出力 1mW] を用いた．このレーザ変位計の有効性は高温下における曲げ試験および曲げクリープ試験時のたわみの計測結果^{(42),(43)}，引張試験および引張クリープ試験時の微小引張変位の計測結果^{(41),(44)}において実証されている．さらに，炉内の熱ゆらぎ，

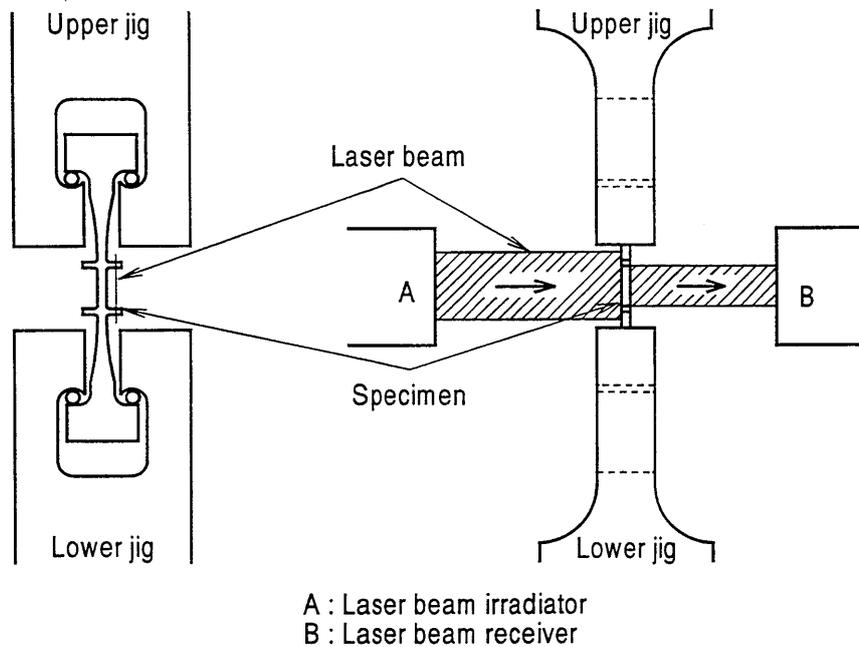


Figure 3-5 Schema of measurement of dynamic creep deformation by means of the laser-beam-type extensometer

および炉内に充填したセラミックスファイバ等の浮遊に起因するノイズを除去するために、レーザ変位計測装置と X-Y レコーダとの間にフィルタ [エヌエフ回路設計ブロック (株) 製, E-3201] を装着した。図 3-5 に突起部付試験片とレーザ変位計測装置とを用いたクリープ変位測定の概略図を示す。これは、レーザ光線を突起部の中央付近で走査させることにより上部および下部突起部間の電位差を検出し、これを変位に換算するものである。

< 3 - 2 - 3 - 3 動クリープ試験 >

図 2-18 に示される突起部付試験片を用いて、1300℃下、荷重制御下で動クリープ試験を実施した。このとき、応力波形として三角波を採用した。最大応力および応力速度はそれぞれ、 $\sigma_{\max}=70\text{MPa}$ 、および $\dot{\sigma}=0.1, 0.5, 20\text{MPa/sec}$ である。また、応力比は、 $R=0.371, 0.429, 0.571$ および 0.714 とした。なお、応力速度 $\dot{\sigma}$ は、

$$\dot{\sigma} = 4f\sigma_a \quad (3-2)$$

で与えられる。ただし、 f は繰返し周波数、 σ_a は応力振幅である。

3 - 3 実験結果

3 - 3 - 1 測定結果

試験温度 1300℃ の下、三角応力波を用いて動クリープ試験を実施し、レーザ変位計測装置により試験片突起部間に生じる軸方向動クリープ変位の計測を行った。図 3-6 にロードセルからの応力波形およびこれに対応して測定された試験片突起部間距離の変化の X-Y レコーダへの出力例を示す。なお、このときの試験条件は平均応力 $\sigma_m = 55\text{MPa}$ 、応力振幅 $\sigma_a = 15\text{MPa}$ 、応力速度 $\dot{\sigma} = 0.1\text{MPa/sec}$ である。また、図 3-7(a)および(b)にそれぞれ、 $[\sigma_m(\text{MPa}), \sigma_a(\text{MPa}), \dot{\sigma}(\text{MPa/sec})] = (48, 22, 0.1)$ および $(60, 10, 0.5)$ の試験条件下で得られた試験片突起部間変位 δ と時間 t およ

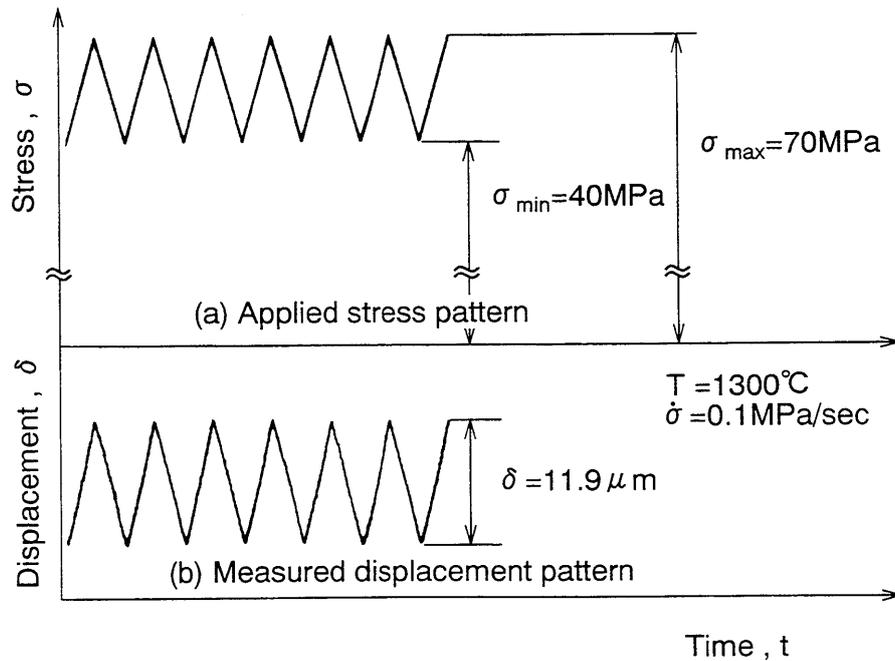
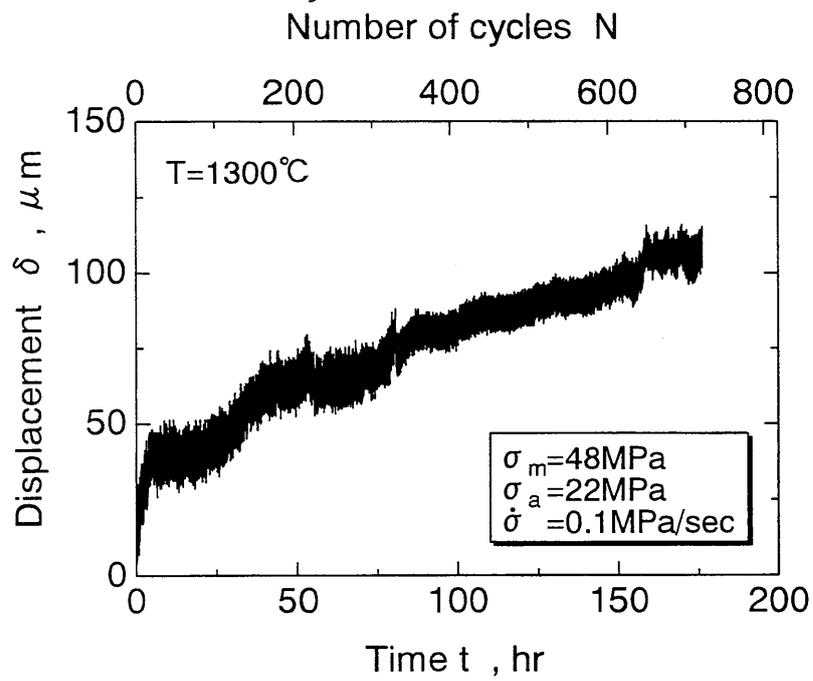
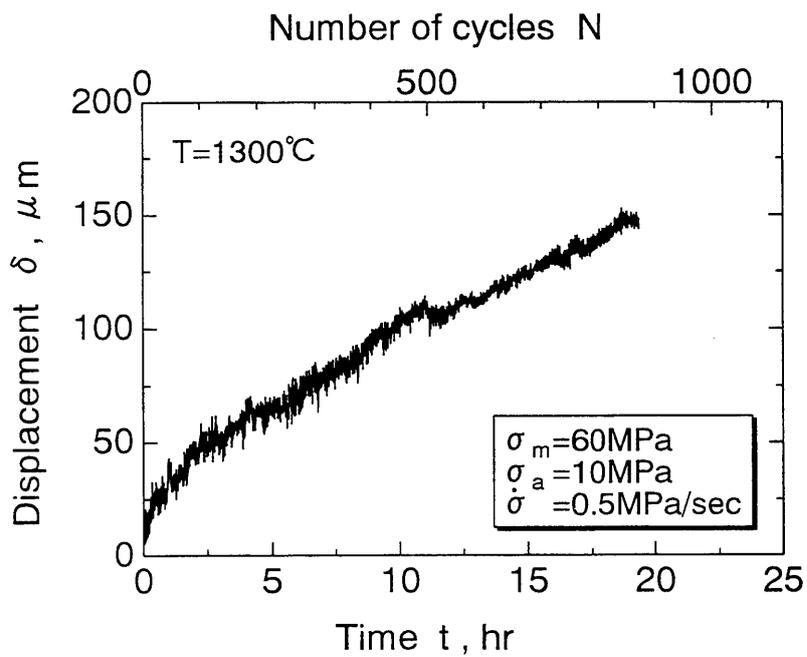


Figure 3-6 Imposed triangular stress wave and measured displacement during dynamic creep test at $T=1300^{\circ}\text{C}$



(a) $\sigma_m=48\text{MPa}$, $\sigma_a=22\text{MPa}$ and $\dot{\sigma}=0.1\text{MPa/sec}$



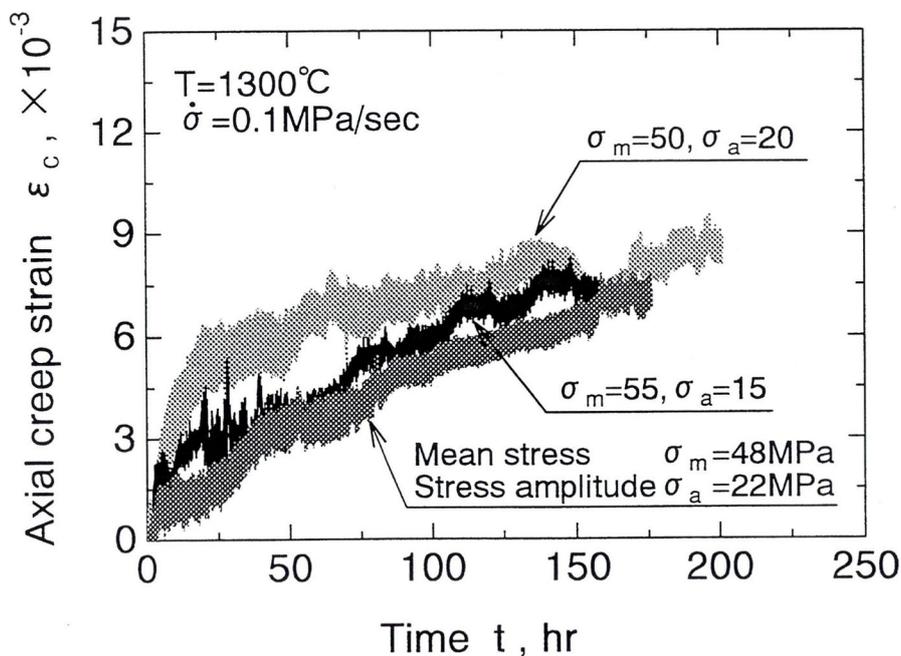
(b) $\sigma_m=60\text{MPa}$, $\sigma_a=10\text{MPa}$ and $\dot{\sigma}=0.5\text{MPa/sec}$

Figure 3-7 Variations of dynamic creep displacement with increase in test time and number of cycles, which were measured at $T=1300^\circ\text{C}$

び繰返し数 N との関係を示す。図より、動クリープ試験中、かなりばらつきは認められるが、レーザ変位計測装置を用いて高温下で試験片に生じる動クリープ変位を約 200 時間にわたり安定して測定できることがわかる。

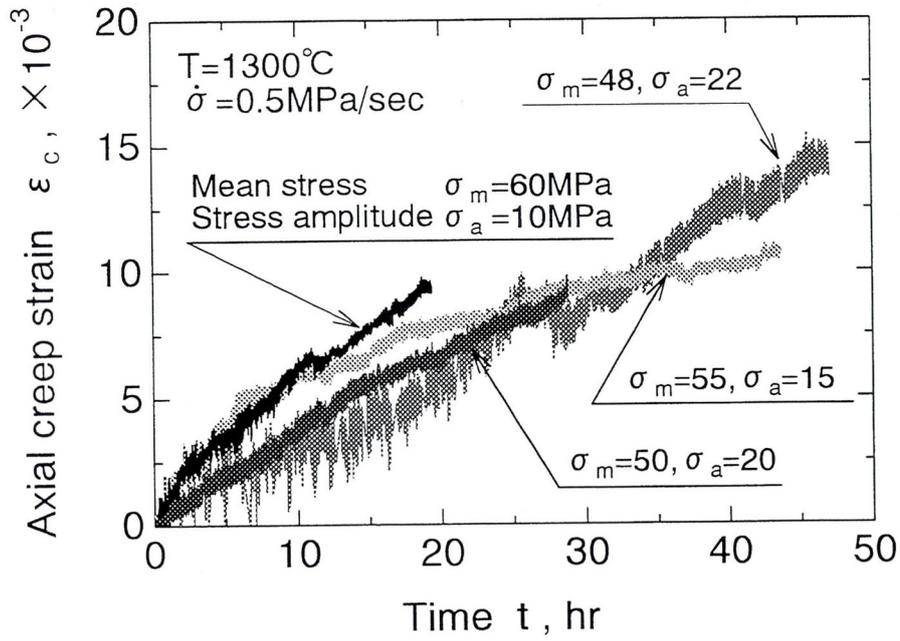
3-3-2 動クリープ曲線

試験温度 1300°C の下、応力速度 $0.1, 0.5$ および 20MPa/sec の三角応力波を負荷することにより得られた動クリープ曲線を図 3-8(a)~(c) に示す。図 3-8(c) 中、 $\sigma_m=55\text{MPa}$, $\sigma_a=15\text{MPa}$, $\dot{\sigma}=20\text{MPa/sec}$ の条件下で得られた動クリープ曲線の一部に、繰返し変位波が欠落している領域が存在する。これは、変位測定中、X-Y レコーダのペンあるいは記録紙を交換する際に生じたもので、試験の中断によるものではない。なお、軸方向動クリープひずみ ε_c は、図 3-7 に示されるレーザ変位計測装置に

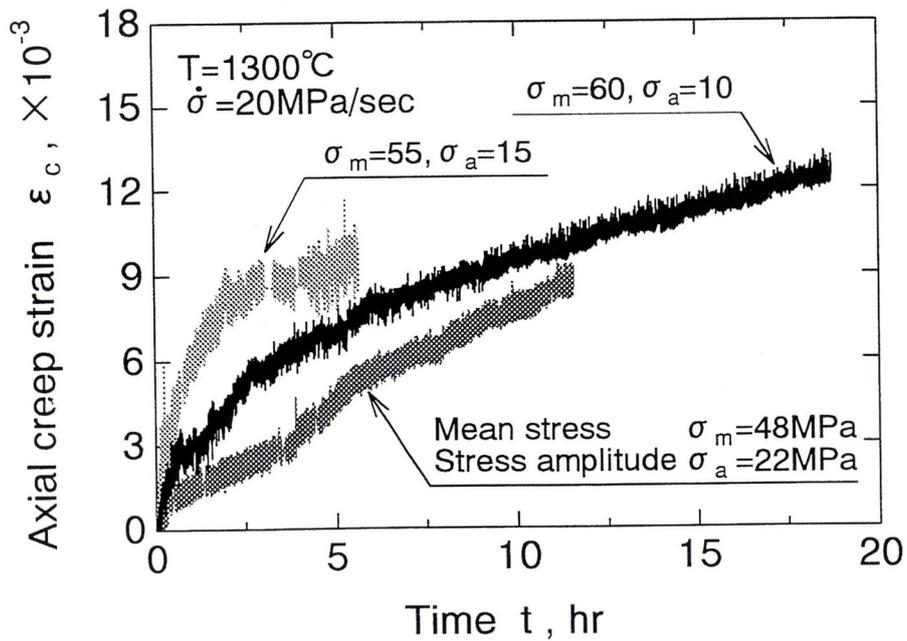


(a) $\dot{\sigma}=0.1\text{MPa/sec}$

Figure 3-8 Dynamic creep curves measured at $T=1300^{\circ}\text{C}$



(b) $\dot{\sigma}=0.5\text{MPa/sec}$

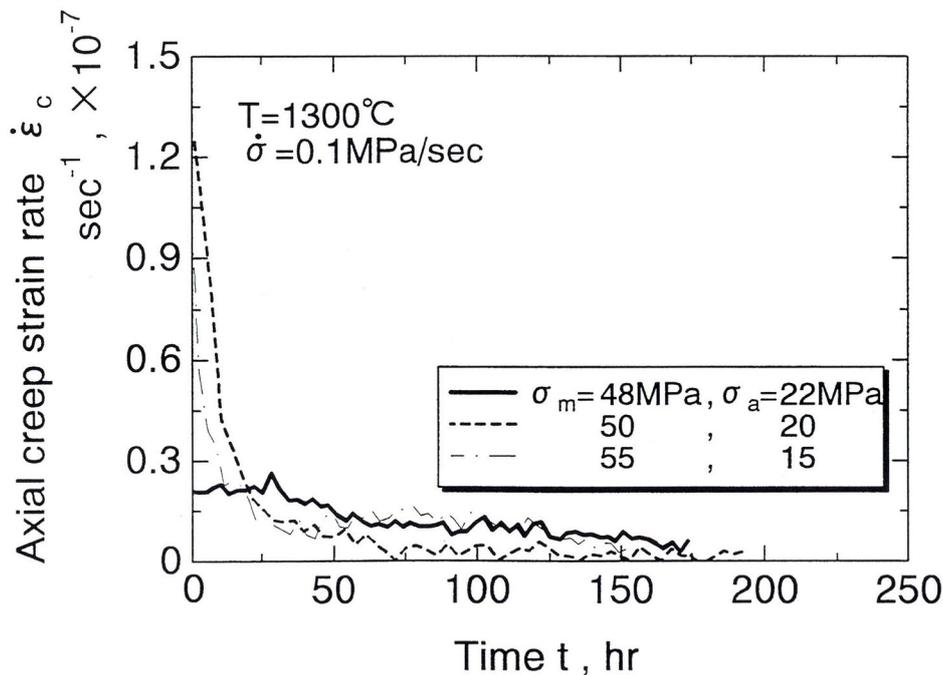


(c) $\dot{\sigma}=20\text{MPa/sec}$

Figure 3-8 Dynamic creep curves measured at $T=1300^{\circ}\text{C}$

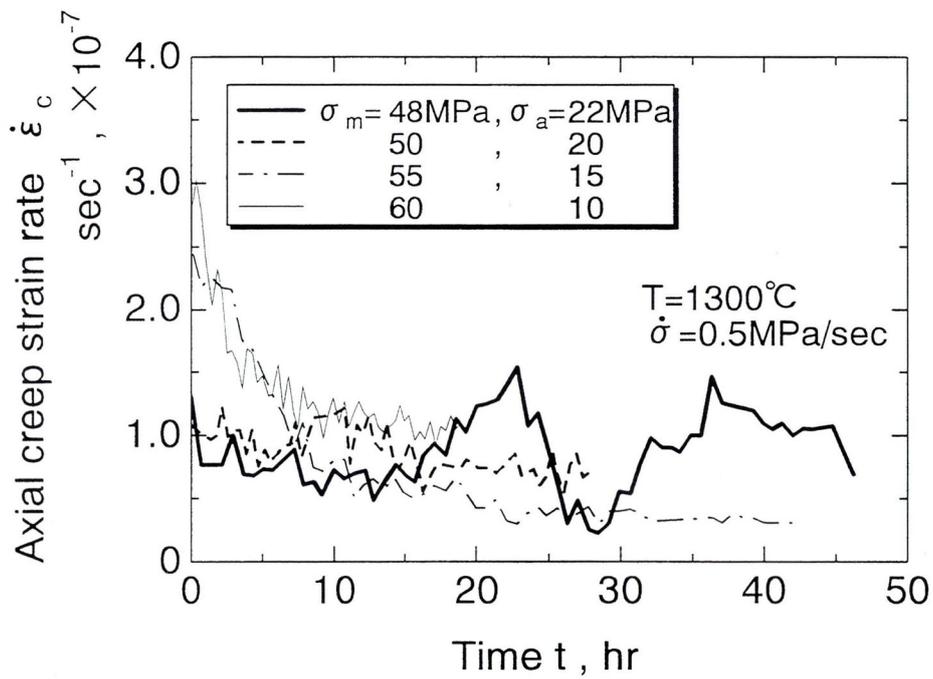
より測定された試験片突起部間の変位を動クリープ試験開始前の突起部間の距離で除すことにより算出される全ひずみから時刻 0 において平均応力を負荷した直後に生じた初期弾・塑性ひずみを差し引くことにより得た。このため、図 3-8 で示した軸方向動クリープひずみには、 $\sigma - \sigma_m$ に相応する弾・塑性ひずみが含まれている。ただし、 $\sigma = \sigma_m + \sigma_a$ である。

$\dot{\sigma} = 0.1, 0.5$ および 2.0 MPa/sec の下で測定した動クリープ曲線から試験時間の経過に伴うクリープひずみ速度の変化を求めた結果を図 3-9(a) ~ (c) に示す。これらの図より、 $[\sigma_m (\text{MPa}), \sigma_a (\text{MPa}), \dot{\sigma} (\text{MPa/sec})] = (50, 20, 0.1), (55, 15, 0.1), (55, 15, 0.5), (60, 10, 0.5), (60, 10, 2.0)$ および $(55, 15, 2.0)$ の試験条件下で得た動クリープ曲線は、遷移クリープ状態を経た後、定常クリープ状態に達していることがわかる。このような、定常クリープ状態への移行は σ_m が大きく σ_a が小さい試験条件下において

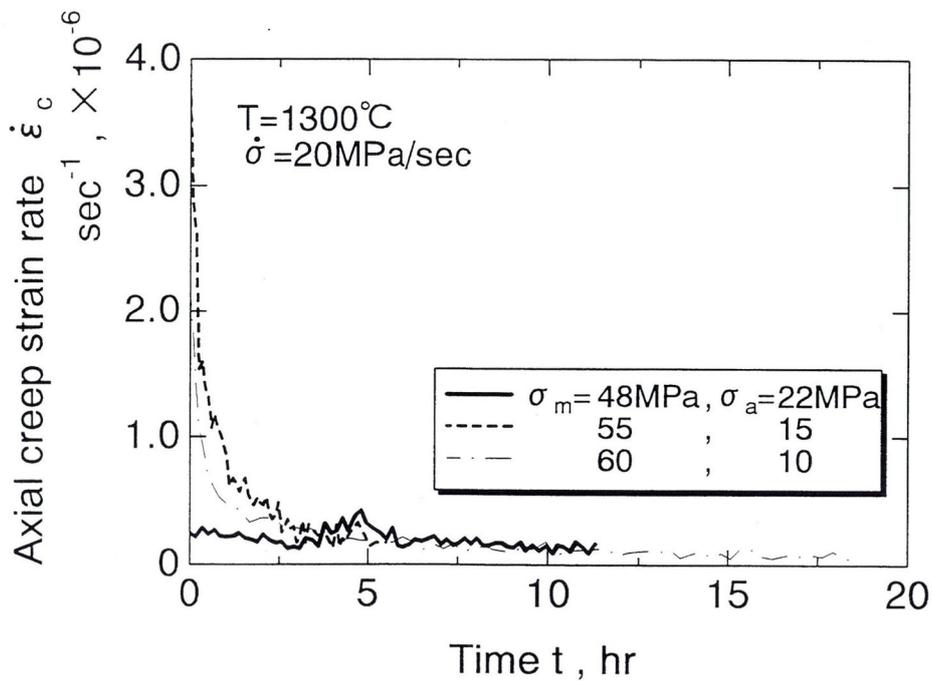


(a) $\dot{\sigma} = 0.1 \text{ MPa/sec}$

Figure 3-9 Change in axial creep strain rate in dynamic creep test at $T=1300^\circ\text{C}$



(b) $\dot{\sigma} = 0.5 \text{ MPa/sec}$



(c) $\dot{\sigma} = 20 \text{ MPa/sec}$

Figure 3-9 Change in axial creep strain rate in dynamic creep test at $T=1300^\circ\text{C}$

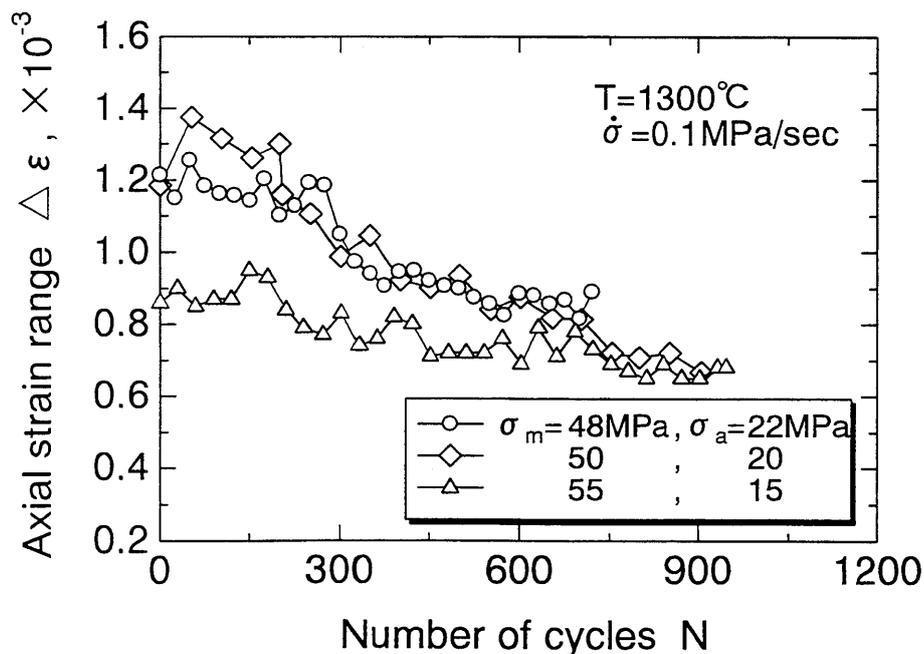
生じ易い傾向にあった。一方、 σ_m が小さく σ_a が大きい試験条件下では動クリープ変形が等クリープひずみ速度で進行する傾向にあった。

動クリープ曲線の一部に軸方向クリープひずみ幅 $\Delta\varepsilon_c$ が急激に増大している部分が認められる。これは、電気ノイズ、加熱された空気の対流による揺らぎおよび炉内に充填したセラミックスファイバ、炉外の塵、ほこり等によるレーザ光線の通過経路の乱れ等に起因すると思われる。

なお、試験片は $[\sigma_m(\text{MPa}), \sigma_a(\text{MPa}), \dot{\sigma}(\text{MPa}/\text{sec})] = (50, 20, 0.1)$ の条件下では突起部付け根から離れた試験片平行部で、また、その他の試験条件の下では突起部付け根で破断したことを付記しておく。

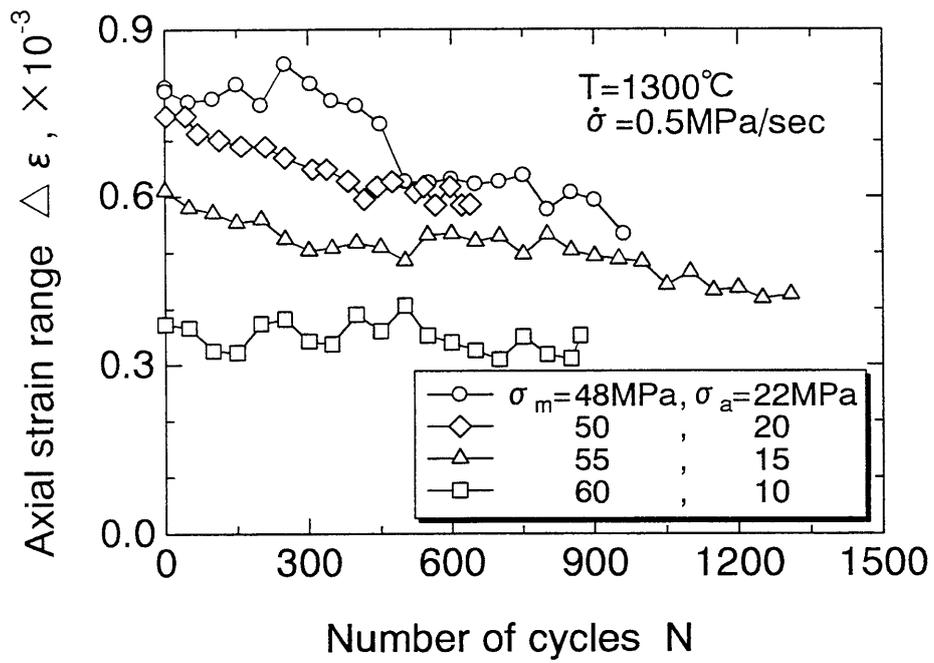
3-3-3 繰返し変形過程中的の軸方向ひずみ幅の変化

図 3-10(a)~(c)にそれぞれ、 $\dot{\sigma}=0.1, 0.5$ および $20\text{MPa}/\text{sec}$ の下で得られた繰返し変形過程中的の軸方向ひずみ幅の変化を示す。図より、何れ

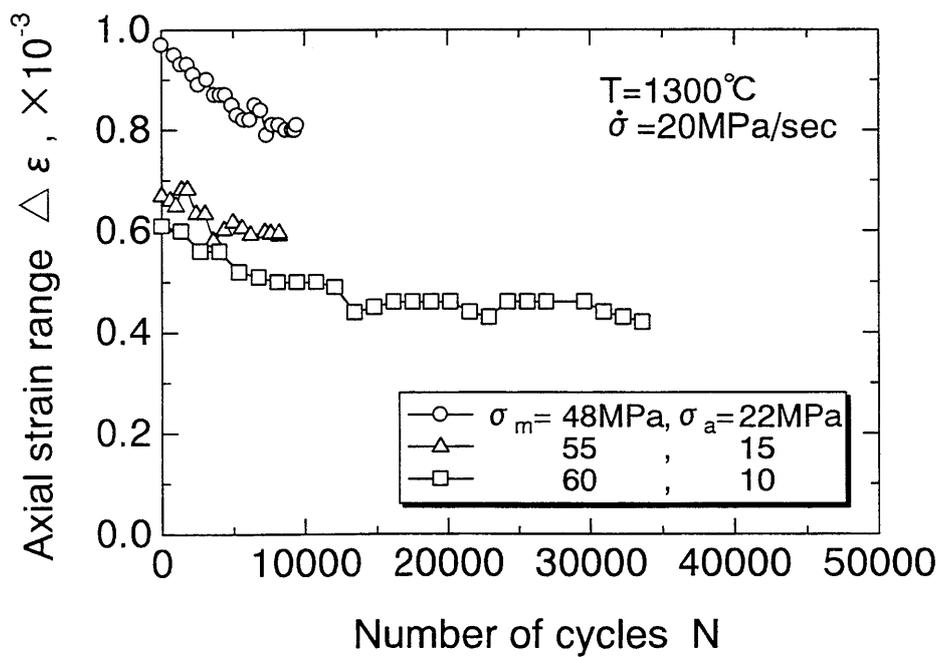


(a) $\dot{\sigma}=0.1\text{MPa}/\text{sec}$

Figure 3-10 Change in axial strain range in dynamic creep test at $T=1300^\circ\text{C}$



(b) $\dot{\sigma}=0.5\text{MPa/sec}$



(c) $\dot{\sigma}=20\text{MPa/sec}$

Figure 3-10 Change in axial strain range in dynamic creep test at T=1300°C

の試験条件下においても，軸方向ひずみ幅は繰返し数の増加に伴い連続的に減少し，繰返し変形抵抗が増大していることがわかる．そしてこのような軸方向ひずみ幅の減少は大きい応力振幅下において顕著な傾向にある．

3 - 3 - 4 静クリープ試験結果との比較

<3 - 3 - 4 - 1 等価応力の定義>

平ら⁽⁴⁵⁾によって提唱された等価応力を用い，静クリープ試験結果に基づいて動クリープ変形を推定することを試みた．等価応力は次のように導かれる．

まず，静クリープひずみ ε_c を次に示す応力べき乗則により表現する．

$$\varepsilon_c = K\sigma^n t^m \quad (3-3)$$

ここで，応力が時間とともに変動する試験条件下のクリープ則として，ひずみ硬化則⁽⁴⁰⁾を導入すると，式(3-3)は，

$$\dot{\varepsilon}_c = mK^n \sigma^n \varepsilon_c^{m-1} \quad (3-4)$$

となる．式(3-4)を積分することにより，動クリープひずみ ε_c は次式により与えられる．

$$\varepsilon_c = K \left[\int_0^t \sigma^n dt \right]^m \quad (3-5)$$

一方，平均応力 σ_m ，応力振幅 σ_a ，角周波数 ω の三角応力波 σ は次式で与えられる．

$$\sigma = \sigma_m + \frac{8\sigma_a}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \quad (3-6)$$

これを，式(3-5)に代入することにより次の動クリープ構成式を導くことができる．

$$\varepsilon_c = K\sigma_m^n \left[\int_0^t \left\{ 1 + \frac{8(\sigma_a/\sigma_m)}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \right\}^{\frac{n}{m}} dt \right]^m \quad (3-7)$$

繰返し数を N とすれば, $\omega t = 2\pi N$ であるので式(3-7)は,

$$\varepsilon_c = K\sigma_m^n \left[\frac{N}{\omega} \int_0^{2\pi} \left\{ 1 + \frac{8(\sigma_a/\sigma_m)}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \right\}^{\frac{n}{m}} d(\omega t) \right]^m \quad (3-8)$$

となる. 今,

$$I = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left\{ 1 + \frac{8(\sigma_a/\sigma_m)}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \right\}^{\frac{n}{m}} d(\omega t) \quad (3-9)$$

とおくと

$$\varepsilon_c = K\sigma_m^n t^m I^m \quad (3-10)$$

に変形される.

ここで, 次式で表現される等価応力を考える.

$$\begin{aligned} \sigma_{eq} &= \sigma_m I^{\frac{m}{n}} \\ &= \sigma_m \left[\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left\{ 1 + \frac{8(\sigma_a/\sigma_m)}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \right\}^{\frac{n}{m}} d(\omega t) \right]^{\frac{m}{n}} \end{aligned} \quad (3-11)$$

ただし, m および n は静クリープ試験結果より求められた式(3-3)中の係数である. このとき, 式(3-10)は,

$$\varepsilon_c = K\sigma_{eq}^n t^m \quad (3-12)$$

となる. これは静クリープ変形状態を表現する式(3-3)と同形である. 式(3-11)を用いることにより, ある与えられた試験時間中に定常動クリープひずみ速度と等しい定常クリープひずみ速度を生じさせる静クリープ応力として定義される等価応力 $\sigma_{eq,1}$, および動クリープひずみと等しい静クリープひずみを生じさせる静クリープ応力として定義される等価

応力 $\sigma_{eq,2}$ が求められる。また、この $\sigma_{eq,2}$ と静クリープ試験結果より得られる係数 K 、 m および n を式 (3-12) に代入することにより任意の負荷条件下の動クリープひずみを算定できる。なお、式 (3-12) 中に含まれる材料定数 K 、 m および n は、先に本研究室で 1300℃ の下で実施した結果得た静クリープ試験結果⁽¹⁹⁾ より遷移クリープ領域および定常クリープ領域に対して次のように決定された。

遷移クリープ領域において、軸方向公称応力 σ および時間 t の下で実験より得られた軸方向静クリープひずみ $\varepsilon_c(\sigma, t)_{Exp}$ とこれに対応する軸方向静クリープひずみの計算値との差の絶対値

$$|(\Delta\varepsilon_c)_{Ana-Exp}| = |K\sigma^m t^n - \varepsilon_c(\sigma, t)_{Exp}| \quad (3-13)$$

を考える。そして、係数 K 、 m および n を変化させ繰返し計算を実施することにより $|(\Delta\varepsilon_c)_{Ana-Exp}|$ がすべての静クリープ試験結果に対して最小となるような係数 K 、 m および n を決定する。これらを遷移クリープに対する K 、 m および n とした。一方、定常クリープ領域に対しては、 $m=1.00$ とし、 $\log \dot{\varepsilon}_{cmin}$ vs. $\log \sigma$ 線図の勾配および軸方向クリープひずみ速度軸切片から n および $\log K$ を得た。このようにして決定された係数はそれぞれ、遷移クリープ領域に対して、 $K=1.36 \times 10^{-9}$ 、 $m=0.451$ 、 $n=2.30$ 、また、定常クリープ領域においては、 $K=1.37 \times 10^{-15}$ 、 $m=1.00$ 、 $n=4.09$ であった。

< 3 - 3 - 4 - 2 軸方向定常クリープひずみ速度 - 等価応力関係 >

図 3-11 に、静クリープ試験より得た軸方向定常クリープひずみ速度 $\dot{\varepsilon}_{cmin}$ - 軸方向公称応力 σ 関係を○印で示した。なお、図中、実線は静クリープ試験より得た $\dot{\varepsilon}_{cmin}$ - σ 関係を最小二乗法を用いて直線近似した結果⁽¹⁹⁾ である。これは次式で与えられる。

$$\dot{\varepsilon}_{cmin} = 1.37 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad [\text{sec}^{-1}] \quad (3-14)$$

これより、先述したように、定常クリープ領域において静クリープ試験結果より算出される n/m は 4.09 となる。そこで、ある軸方向定常動ク

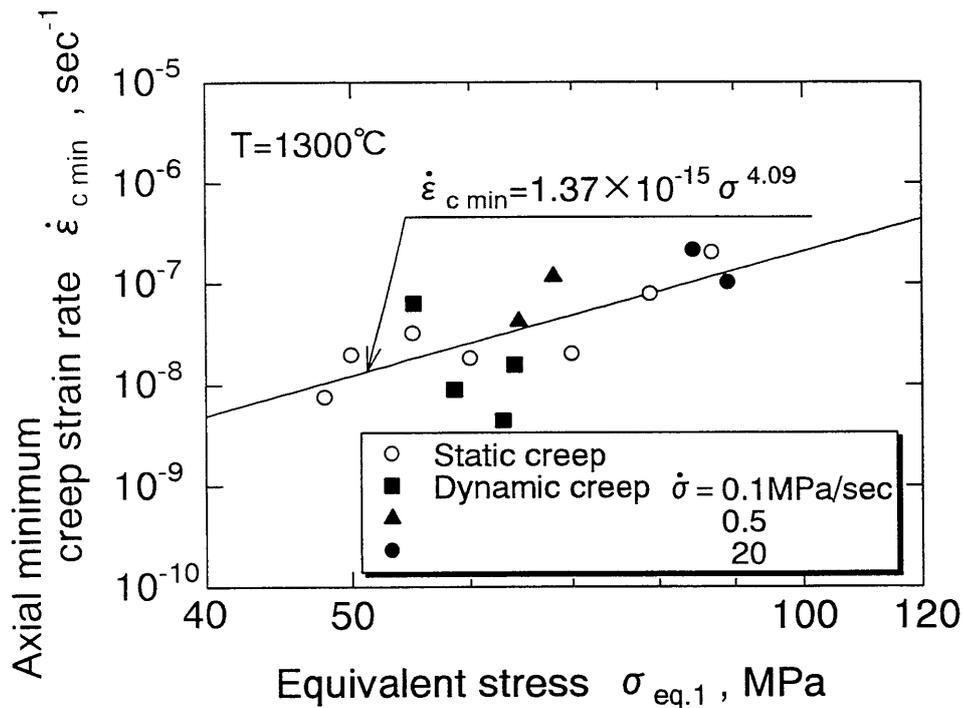


Figure 3-11 Axial minimum creep strain rate plotted against equivalent stress

リープひずみ速度と等しい軸方向定常静クリープひずみ速度を生じさせる静クリープ応力として定義される軸方向定常動クリープひずみ速度に対する等価応力 $\sigma_{eq,1}$ は式(3-11)に $n/m=4.09$ を代入することにより求められる。

図 3-8(a)~(c)に示した動クリープ曲線の定常クリープ領域を最小二乗法を用いて直線近似することによりその傾きを求め、これを軸方向定常動クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{c,min}$ とした。軸方向定常動クリープひずみ速度と等価応力の関係を両対数紙上にプロットした結果を図 3-11 中、■, ▲および●印で示す。なお、軸方向定常動クリープひずみ速度は図 3-8(a)~(c)に示した動クリープ曲線の変位幅の中央付近、すなわち、 $\sigma = \sigma_m$ における動クリープ曲線に関する軸方向定常動クリープひずみ速度である。図 3-11 によると、動クリープ曲線より得た軸方向定常動クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{c,min}$ と式(3-11)を通じて算出した $\sigma_{eq,1}$ との関係は軸方向定常静クリー

プひずみ速度と静応力との関係とよく一致している。これは、動クリープ変形が静クリープ変形と同様な機構で生じていることを示唆している。また、これは 3-3-3 節で示した 1300℃における動クリープ試験中に生じる繰返し変形抵抗の増大が軸方向定常動クリープひずみ速度に及ぼす影響は大きくないことを示唆する。

〈3 - 3 - 4 - 3 動クリープ破断寿命の評価〉

クリープ破断寿命に対しても軸方向定常クリープひずみ速度におけると同様な比較を実施するため、新たにクリープ破断寿命に対する等価応力の算定を試みる。クリープ破断寿命はほぼ遷移クリープ領域で費やされた時間と定常クリープ領域で費やされた時間の和で与えられる。ところで、先述したように n/m は遷移クリープおよび定常クリープ領域で異なる値を有している。このため、クリープ破断寿命に対する等価応力を決定するためには動クリープ試験中、遷移クリープ領域が占める時間と定常クリープ領域が占める時間の割合およびそれぞれのクリープ段階に対応する異なる二種類の n/m が必要である。しかしながら、動クリープ試験中、遷移クリープ領域が占める時間と定常クリープ領域が占める時間の割合を静クリープ試験結果のみを用いて予測することは困難である。ところで一般に、ある試験条件の下で応力と静クリープ破断寿命の間には近似的に両対数紙上で直線関係が成立することが知られている⁽³²⁾。これを利用すると、遷移クリープ領域と定常クリープ領域を区別することなしにクリープ破断寿命に対する等価応力を算出できる可能性がある。

式(3-3)において、 $t=t_f$ とおき、また、このとき $\varepsilon_c = \varepsilon_{cf}$ となるとするとこれは次のように変形できる。

$$\log t_f = -\frac{n}{m} \log \sigma + \frac{1}{m} (\log \varepsilon_{cf} - \log K) \quad (3-15)$$

ただし、 ε_{cf} はクリープ破断時の軸方向クリープひずみである。式(3-15)は、 $\log t_f$ と $\log \sigma$ の間に直線関係が成立するような試験条件の下では、そ

の勾配は n/m であることを示している。

静クリープ試験より得た $\sigma-t_f$ 関係 (○印) を両対数紙上にプロットした結果を図 3-12 に示した。図より $\log\sigma-\log t_f$ 関係は直線で近似でき、実線で表現できることがわかる。なお、実線は○印を最小二乗法を用いて直線近似した結果⁽¹⁹⁾を示している。この直線は次式で与えられる。

$$t_f = 1.74 \times 10^{15} \sigma^{-7.37} \text{ [hr]} \quad (3-16)$$

この式より $n/m=7.37$ を求め、これを式 (3-11) に代入することにより動クリープ破断寿命に対する等価応力 $\sigma_{eq,2}$ を算出した。動クリープ試験より得た $\log\sigma_{eq,2}-\log t_f$ 関係を $\log\sigma-\log t_f$ 関係に加えて ■, ▲ および ● 印でプロットした。これによると $\log\sigma_{eq,2}-\log t_f$ 関係は実線付近に散在し、ほぼ $\log\sigma-\log t_f$ 関係と同じ直線で表現されることがわかる。

図 3-13 に、試験より得た軸方向定常動クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{c,min}$ とクリープ破断寿命 t_f との関係を、■, ▲ および ● 印で示した。図中、○印は静クリープ試験結果より得た $\dot{\epsilon}_{c,min}-t_f$ 関係を、また、実線はこれを最小二乗法を用いて直線近似した結果⁽¹⁹⁾を示している。実線は次式で表現

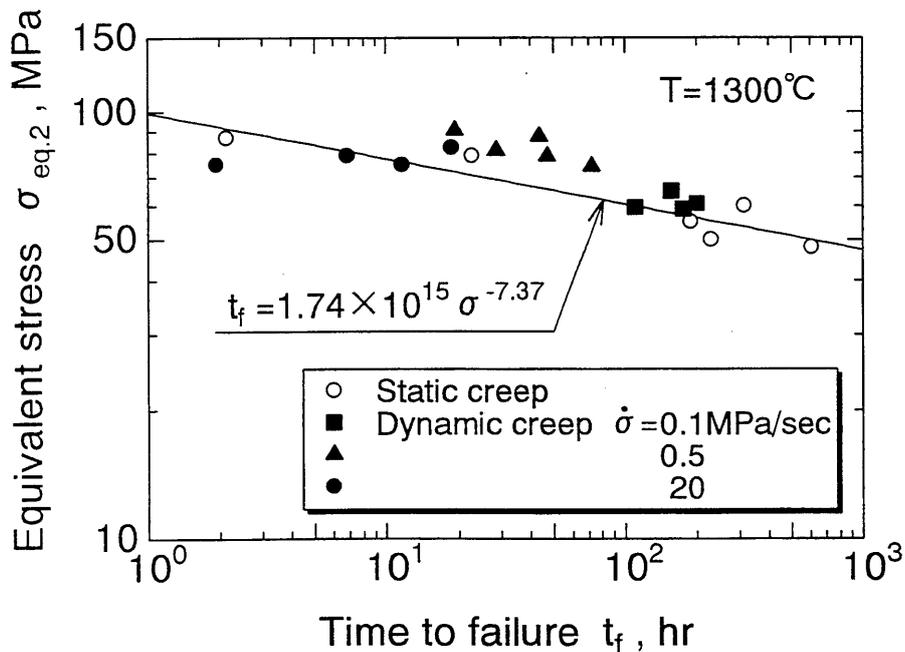


Figure 3-12 Creep life time to failure plotted against equivalent stress

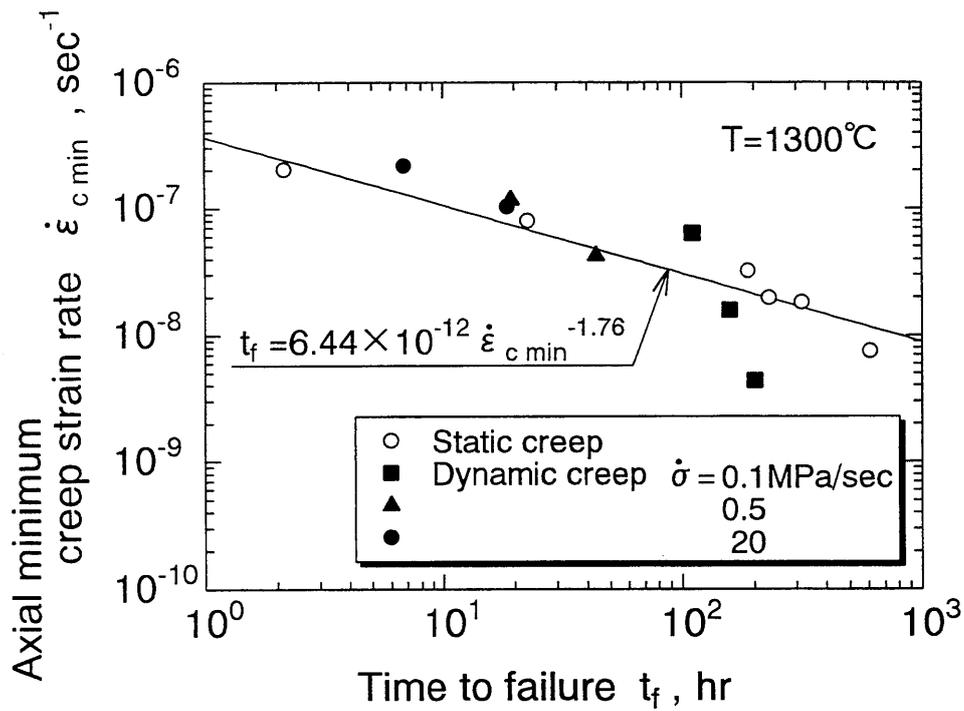


Figure 3-13 Creep life time to failure plotted against axial minimum creep strain rate

される。

$$t_f = 6.44 \times 10^{-12} \dot{\epsilon}_{c \min}^{-1.76} \text{ [hr]} \quad (3-17)$$

図 3-13 は、動クリープ試験結果は静クリープ試験結果とほぼ一致することを示している。

図 3-11 および図 3-13 には図 3-8 中、遷移クリープから定常クリープ状態に移行した動クリープ曲線に関するデータのみがプロットされている。加えてこれらおよび図 3-12 には繰返し変位が精度良く計測できず、図 3-8 に示さなかった動クリープ曲線に関するデータも含まれている。図 3-8 と図 3-11～3-13 のデータの数はずしも一致しないのはこのような理由によることを付記しておく。

3 - 4 動クリープ解析

3 - 4 - 1 解析方法

図 2-16 に示した突起部付試験片に対して非弾性応力-ひずみ解析を実施した。解析は静クリープ有限要素法プログラムを動クリープ解析プログラムへ拡張することにより実施した。この説明図を図 3-14 に示した。また、図 3-15 に本解析のフローチャートを示す。

解析では先ず、2-3-1 節で述べた弾・塑性有限要素解析⁽⁴¹⁾により平均応力 σ_m に対する各要素の弾・塑性応力-ひずみ応答を求める。その後、動クリープ解析を次のように実施する。まず、図 3-14 中、太実線で示す動クリープの応力波形を、微小時間 t_1 ごとに応力 σ_i が変化する静クリープ過程の集合体として表現する。次に試験片中央部の軸方向応力が σ_i の場合に対する各要素の弾・塑性応力-ひずみ応答を求める。そして、式 (3-12) を用いて、各要素について微小時間 $t = \Delta t_i$ に対するクリープひ

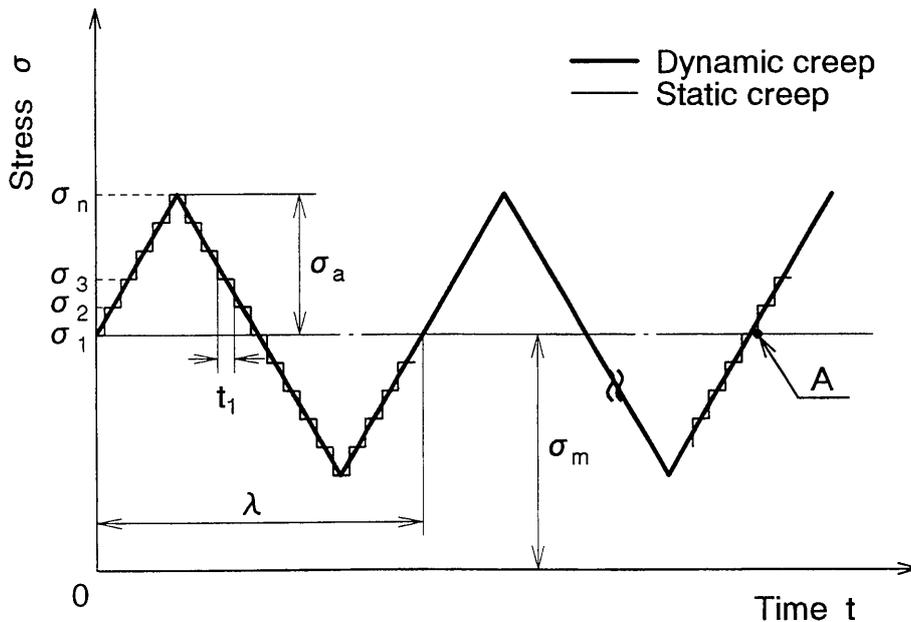


Figure 3-14 Illustration on transformation of dynamic creep process to successive static creep ones

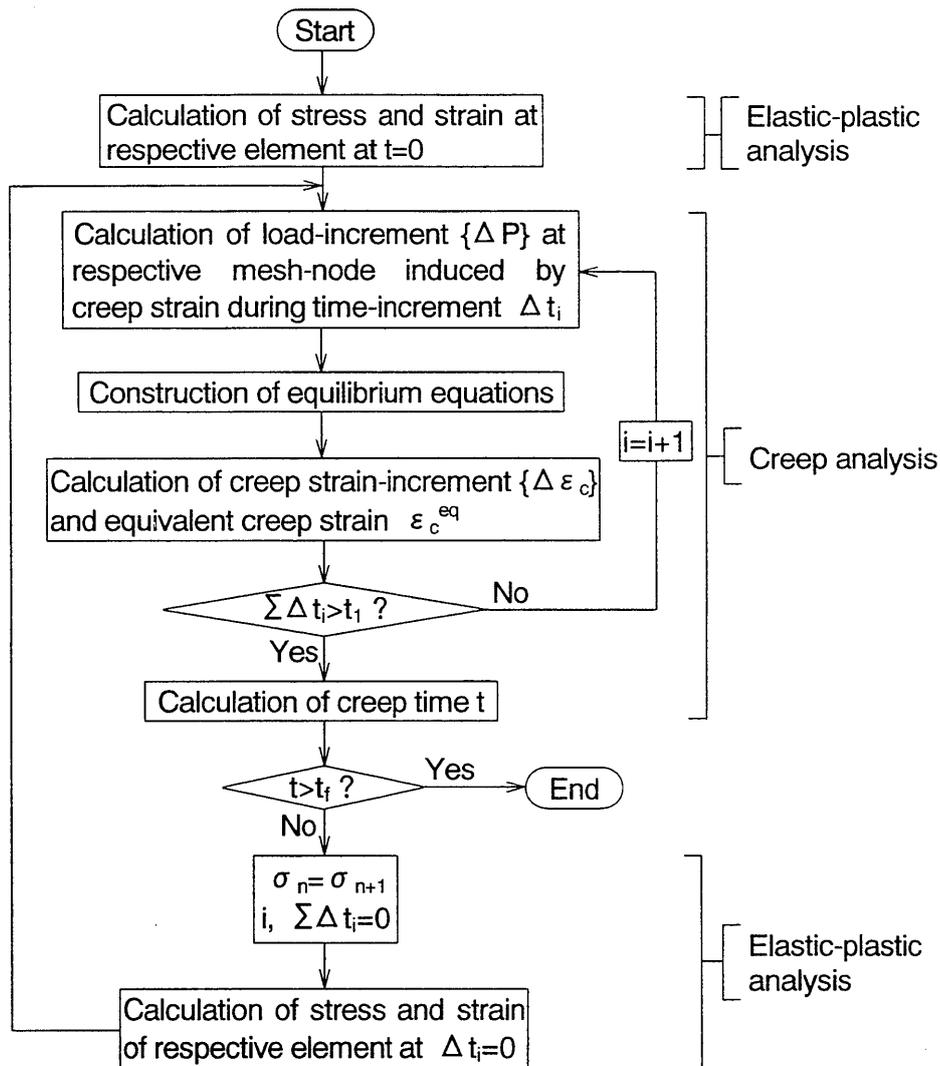


Figure 3-15 Flow chart for calculation of dynamic creep deformation

ずみ増分 $\{\Delta \varepsilon_c\}$ を計算する。なお、式 (3-12) 中に含まれる材料定数 K 、 m および n としては遷移クリープ領域および定常クリープ領域に対してそれぞれ、先に導いた値を用いた。

ところで、図 3-14 に示す応力波形モデルに従い、式 (3-3) を構成式として動クリープ解析を実施すると、階段状の応力変動点で動クリープひずみに不連続点が生じる。式 (3-3) を変形した式 (3-12) を動クリープ構成式として採用した理由はこのような解析上の不都合を解消するためである。

る。

次に， $\{\Delta\varepsilon_c\}$ より各節点に生じる見かけの荷重増分を求め，これにより平衡方程式を組み立てる．これを解くことにより，各節点および要素の変位増分，ひずみ増分および応力増分を求める．さらに，これらの結果を用いて von Mises 型の応力-ひずみ関係に基づき各要素の相当応力および相当クリープひずみ速度を算出する．そして，解析時間が t_1 を超えたとき σ_i を σ_{i+1} に変化させ，上述した手順により再び弾・塑性解析およびクリープ解析を実施する．以上の操作を繰返し行い，計算時間 t がクリープ破断寿命 t_f を超えたとき計算を終了した．なお，本解析プログラムにおいては，クリープひずみ成分に対してはひずみ硬化則が採用されているが，弾・塑性ひずみ成分に対してはひずみ硬化則が含まれていないため，図 3-10(a)~(c)に示したような繰返し変形抵抗の増加をうまく表現することはできない．

3 - 4 - 2 定常動クリープひずみ速度の評価

図 3-16 は，実験より得られた $\dot{\varepsilon}_{cmin} - \sigma_{eq,1}$ 関係と有限要素解析より得られたそれとを比較した結果を示している．図中，●，▲および■印は動クリープ試験により得られた $\dot{\varepsilon}_{cmin} - \sigma_{eq,1}$ 関係を，また○，△および□印は動クリープ解析により算出された $\dot{\varepsilon}_{cmin} - \sigma_{eq,1}$ 関係を示している．さらに同図中，定常クリープ領域に対する有限要素解析に用いた静クリープ構成式(3-14)を実線で示す．まず，動クリープ解析により，応力サイクル中，平均応力値（図 3-14 中，A 点）におけるクリープ変位計測点に位置する要素の節点間の軸方向変位を算出する．この変位から同じ節点間における，平均応力を負荷した直後に生じる軸方向変位に関する計算値を差し引くことによりこの節点間の軸方向クリープ変位を得る．軸方向クリープひずみはこの軸方向クリープ変位を解析前の試験片突起部間距離で除すことにより算出する．異なったクリープ時間に対してこのような軸方向クリープひずみを算出し動クリープ曲線を求める．この動クリープ曲線の定常クリープ領域を最小二乗法を用いて直線近似することにより

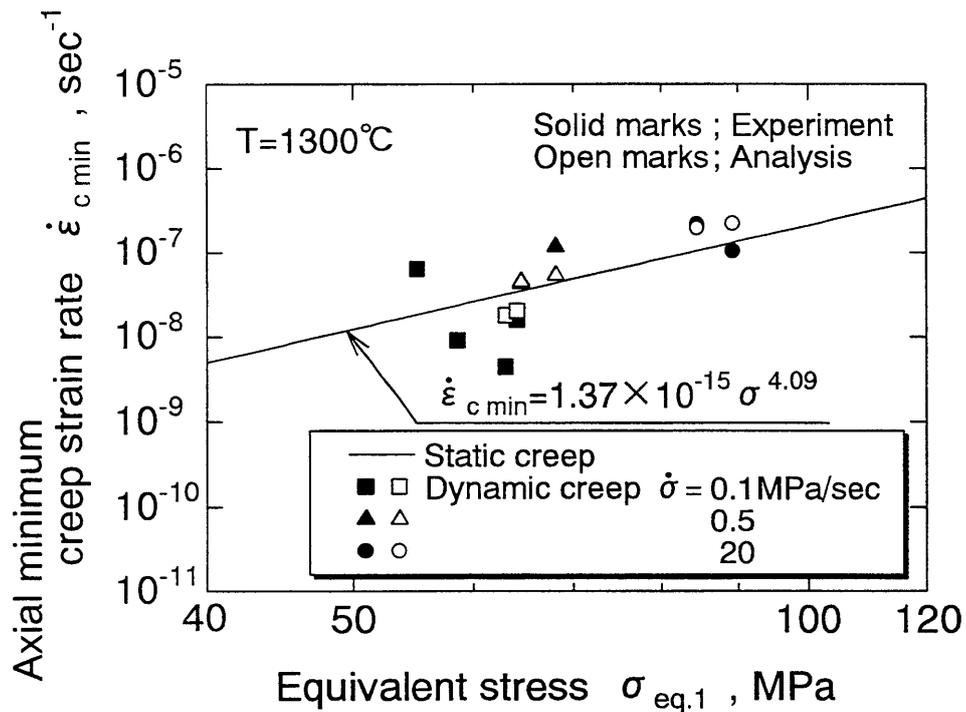


Figure 3-16 Comparison of the relationships between axial dynamic minimum creep strain rate and equivalent stress measured and calculated through the FEM analysis using eq.(3-12)

その傾きを求め、これを解析により得られる突起部間の軸方向定常動クリープひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{c,min}$ とした。

図 3-16 によると、解析結果と定常クリープ領域における動クリープ構成式とはほぼ一致している。このことは、図 2-16 に示した試験片を用いた静クリープ試験結果により常圧焼結窒化けい素セラミックスの軸方向定常動クリープひずみ速度を大略推定できることを示している。

3 - 5 結 言

突起部付試験片を用い、1300°Cの試験温度下で常圧焼結窒化けい素セラミックスの動クリープ試験を実施し、試験中、レーザ変位計測装置を用い試験片に生じる軸方向動クリープ変位を測定した。また、動クリープ試験結果と静クリープ試験結果の関係に検討を加えるとともに、

非弾性有限要素法解析を実施することにより突起部付試験片の定常動クリープ変形過程に検討を加えた。得られた主な結果は次のように要約される。

(1) レーザ変位計測装置を用いて高温下で試験片に生じる軸方向動クリープ変位を約 200 時間にわたり安定して測定できることがわかった。

(2) 時間の経過に伴う動クリープ試験中の軸方向ひずみ幅の変化を調べた結果、常圧焼結窒化けい素セラミックスは 1300℃ 下で繰返し変形抵抗が増大することがわかった。このような繰返し変形抵抗の増大は応力振幅が大きくなるほど顕著であった。

(3) ある与えられた試験時間中に軸方向定常動クリープひずみ速度と等しい軸方向定常クリープひずみ速度を生じさせる静クリープ応力として定義される等価応力 $\sigma_{eq.1}$ 、および軸方向動クリープひずみと等しい軸方向静クリープひずみを生じさせる静クリープ応力として定義される等価応力 $\sigma_{eq.2}$ を導入し、これらを用いて動クリープ試験結果と静クリープ試験結果の間の関係に検討を加えた。その結果、両者のクリープ試験結果は、 $\log \dot{\epsilon}_{cmin}$ vs. $\log \sigma_{eq.1}$ 、 $\log t_f$ vs. $\log \sigma_{eq.2}$ および $\log t_f$ vs. $\log \dot{\epsilon}_{cmin}$ 線図上でそれぞれ共通の 1 本の直線でほぼ表現できることがわかった。これより、動クリープ変形が静クリープ変形と同様な機構で生じることが示唆された。

(4) 静クリープに対する有限要素プログラムを援用して動クリープ有限要素法プログラムを作成し、突起部付試験片の定常動クリープ変形挙動の解析を試みた。そして、本研究で示した突起部付試験片を用いて得た静クリープ構成式に基づき軸方向定常動クリープひずみ速度を推定できることを示した。

第4章 常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温 動クリープ変形過程に生じる微視的構造変化

4 - 1 緒 言

窒化けい素は難焼結性物質であるため、緻密化を促進するために Al_2O_3 、 Y_2O_3 および MgO 等の酸化物焼結助剤が添加される。これらは焼結時に液相を生成し、窒化けい素の緻密化および粒成長を促進するとともに、焼結後は焼結体中に残留し、結晶粒界に結晶あるいはアモルファスの粒界相を形成することが知られている⁽⁴⁶⁾。ところで、高温下ではこの粒界ガラス相に軟化現象が生じるため、窒化けい素のクリープ変形・破壊挙動は、これに伴う粒界ガラス相の粘性流動、キャピテリーの生成、高温 SCG 等に支配される^{(17),(18),(47)~(50)}。第3章において報告した 1300℃下の動クリープ試験中に生じるこの材料の繰返し変形抵抗の変化も、また、この粒界ガラス層の特性が大きく関わっていることが予想される。このため、この材料の高温クリープ特性を解明するためには、この材料の微視的構造を把握することが必要不可欠である。

そこで、本章では前章で実施した動クリープ試験後の試験片に対し、エネルギー分散型 X 線分光装置 (Energy Dispersive X-ray Spectrometer, EDS) による X 線分析を実施し、試験片の構成元素を調べた。さらに、走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM) を用いて動クリープ試験前後の試験片における微視的構造の観察を実施し、これらが動クリープ特性に及ぼす影響について検討を行った。

4 - 2 試験片の構成元素の分析

動クリープ試験前後の試験片に対して EDS による X 線分析を実施し、試験片の構成元素を調べた。X 線分析は図 4-1 に示すような試験片表面に接した荷重軸と垂直な面的一部分に対して行った。表 4-1 に示した試

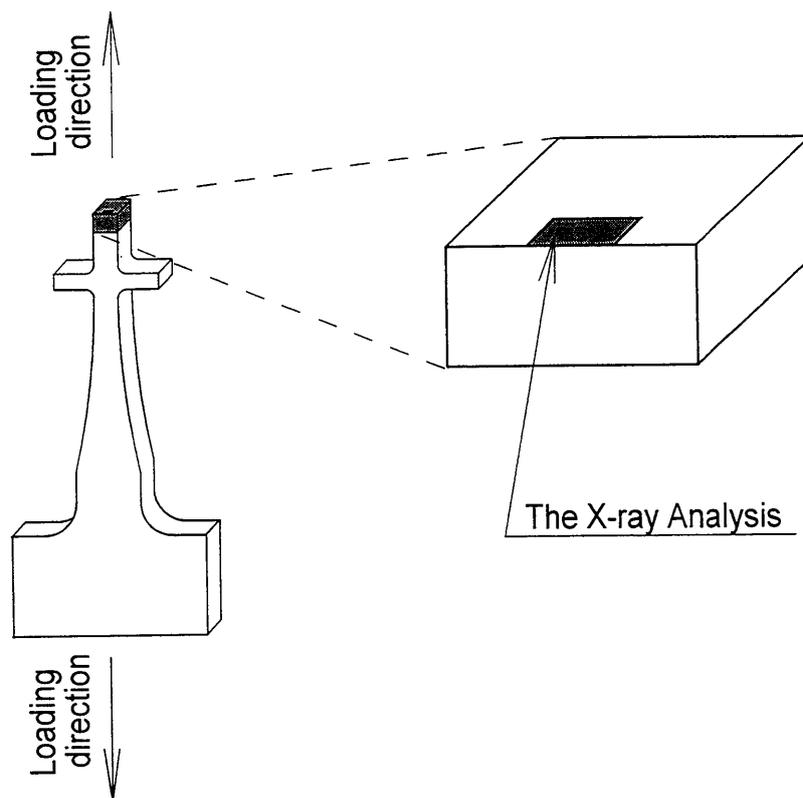


Figure 4-1 Sample preparation for X-ray analysis by means of energy dispersive X-ray spectrometer

Table 4-1 Test conditions under which samples used for X-ray analysis were creep tested

Sample No	Test conditions				Fracture time t_f [hr]
	Temperature [°C]	Mean stress σ_m [MPa]	Stress amplitude σ_a [MPa]	Stress rate $\dot{\sigma}$ [MPa/sec]	
1	Non-tested				
2	1300	55	15	0.5	43.6
3	1300	50	20	0.1	201.1

験条件下で動クリープ試験を実施した試験片に対して X 線分析を行った。以下に観察結果について述べる。

図 4-2 および図 4-3 に各試験条件下で動クリープ試験を行った試験片から作製した試料の X 線分析結果を示す。図中，(a)は分析面の SEM

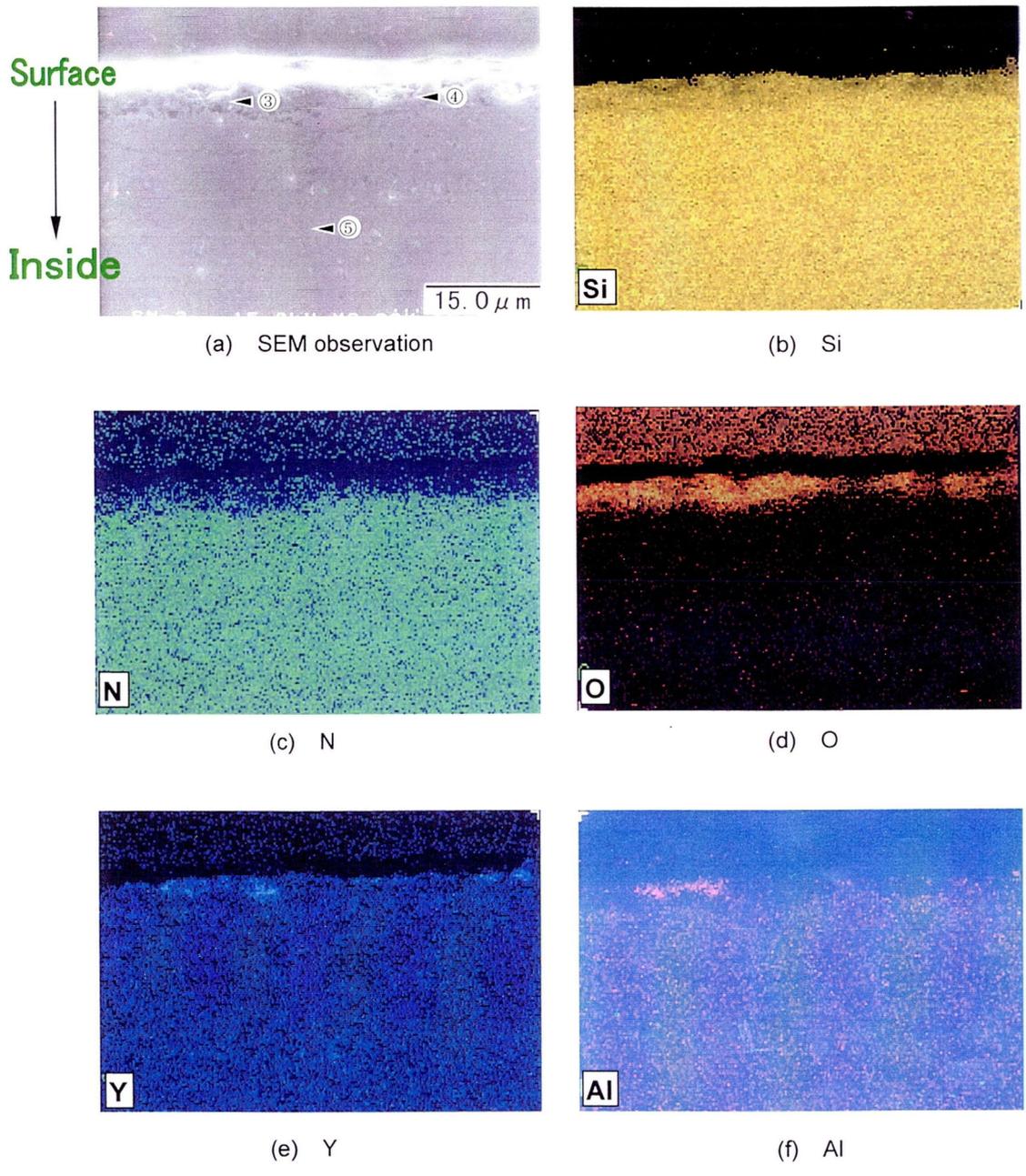


Figure 4-2 Distribution of each elements of Si, N, O, Y and Al in sample no.2
 ($\sigma_m=55\text{MPa}$, $\sigma_a=15\text{MPa}$, $\dot{\sigma}=0.5\text{MPa/sec}$)

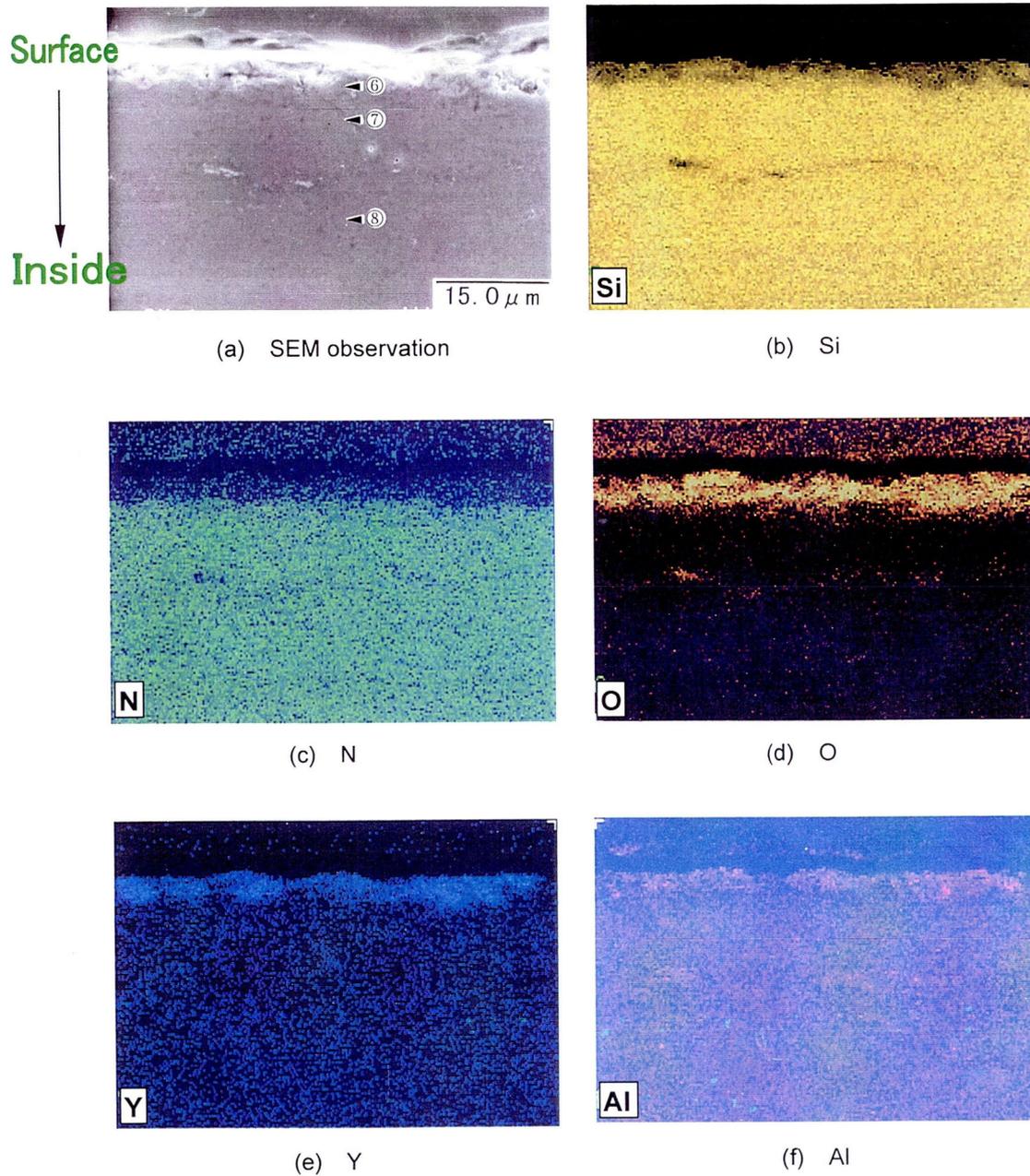
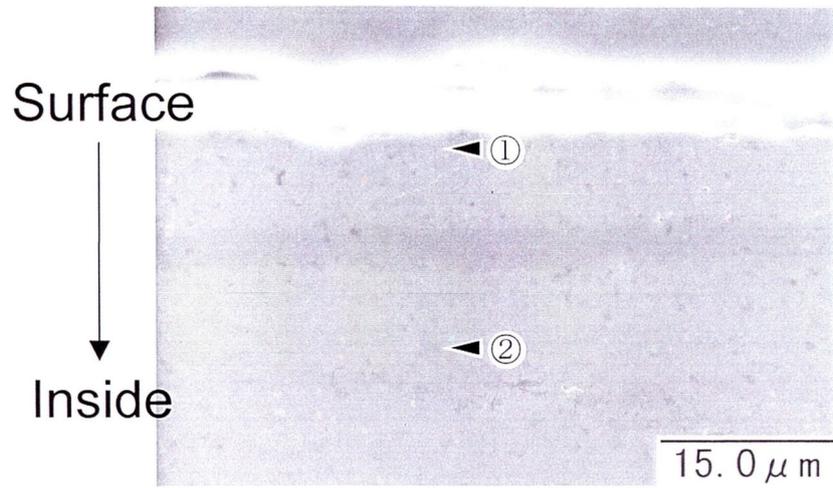


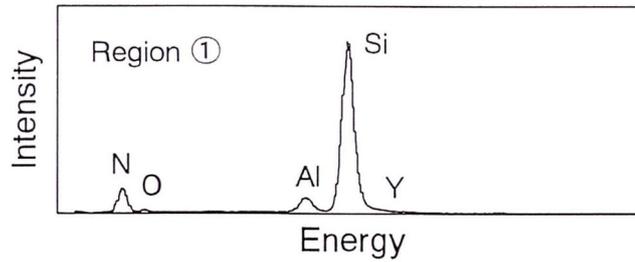
Figure 4-3 Distribution of each element of Si, N, O, Y and Al in sample no.3
 ($\sigma_m = 50\text{MPa}$, $\sigma_a = 20\text{MPa}$, $\dot{\sigma} = 0.1\text{MPa/sec}$)

観察結果を, (b)~(f)はそれぞれ Si (Silicon), N (Nitrogen), O (Oxygen), Y (Yttrium) および Al (Aluminum) の占める重量割合を相対的に示したものである. (b)~(f)における画像の明暗はそれぞれの元素が占める割合の大小に対応している. なお, (a)中の番号は後の図 (図 4-4~4-6) の説明に使用するために付したものであるため, ここではこれらに関する説明を省略する. これによると, 動クリープ試験後の試験片には, 試験片内部に比較して試験表面近傍において O が多く存在するため, この領域における Si および N の占める割合は減少している. また, この部分に Y-rich の領域が存在することが認められる. 窒化けい素は高温保持により, SiO_2 および $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ から構成される酸化層が形成されることが知られている^{(51)~(53)}. このため, 動クリープ試験を実施した試験片の表面近傍に生じる O-rich および Y-rich の領域の存在は, 1300℃における動クリープ試験中, この部分に酸化層が形成されたことを意味する. 一方, Al の分布には領域による差異は認められなかった. 以上についてさらに詳細な検討を行った.

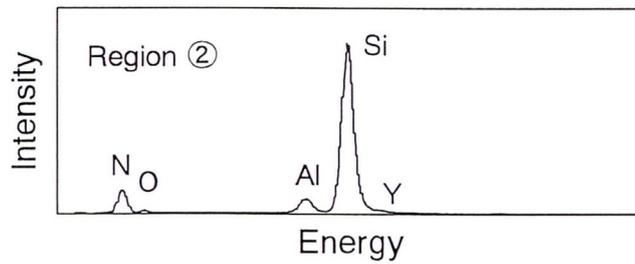
図 4-4~4-6 に試験を行っていない試験片および試験温度 1300℃の下で動クリープ試験を実施した試験片に対して測定した EDS による元素分析結果を示す. 図中, (a)は分析面の SEM 観察結果を, (b)は(a)に示した①~⑧の近傍の $15 \times 3 \mu\text{m}$ の微小領域においてそれぞれの構成元素が占める重量割合を X 線スペクトルとして表示したものである. また, 表 4-2~4-4 にそれぞれの領域で測定した構成元素の重量%を示す. なお, 図 4-5(a)および図 4-6(a)に示した分析面はそれぞれ, 図 4-2(a)および図 4-3(a)に示したそれと同じである. 図 4-5 および表 4-3 によると, 試料 No.2 中の領域③および領域④における構成元素の重量%は試験を行っていない試験片 (試料 No.1 中の領域①および②) のそれと大きく異なっている. 一方, 領域⑤における構成元素の重量%は試験を行っていない試験片のそれとほぼ等しい. これより, 試料 No.2 の試験片に対して形成された酸化層は試験片表面から約 $20 \mu\text{m}$ 以内の領域であることがわかる. さらに, 試料 No.2 において, 試験片表面から同程度の深さにある領域③および領域④における構成元素の重量%の間に差異が生



(a) SEM observation



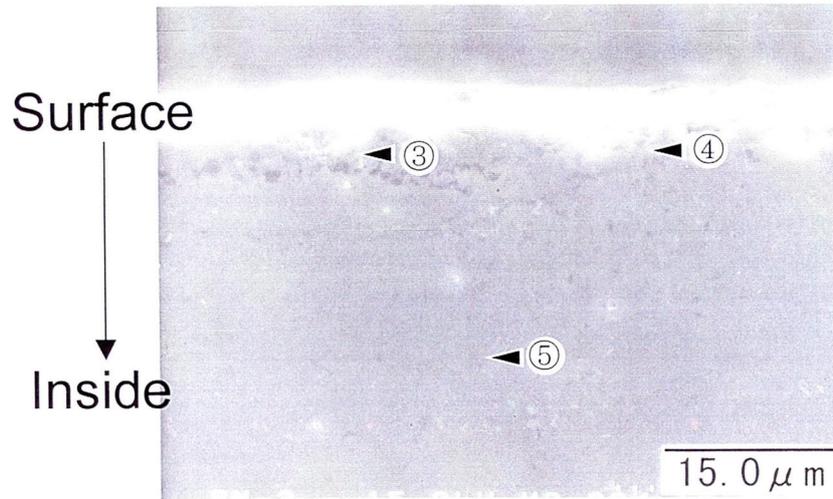
(i) Region ① marked in fig.4-4 (a)



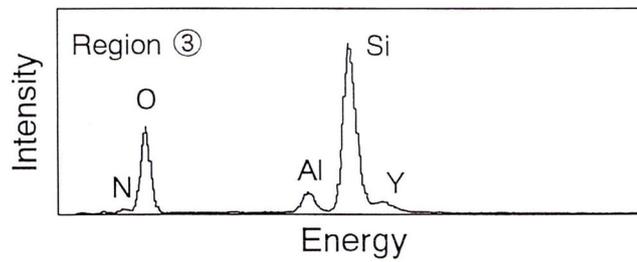
(ii) Region ② marked in fig.4-4 (a)

(b) EDS spectra of regions ① and ② in (a)

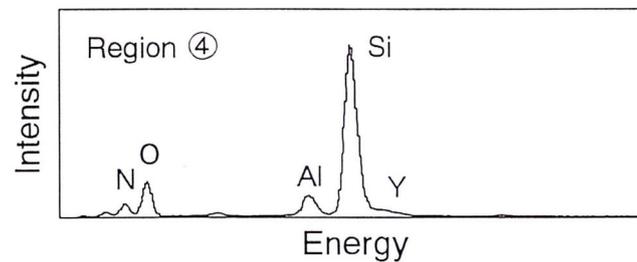
Figure 4-4 Concentration of constitutive elements in sample no.1 (Non-tested)



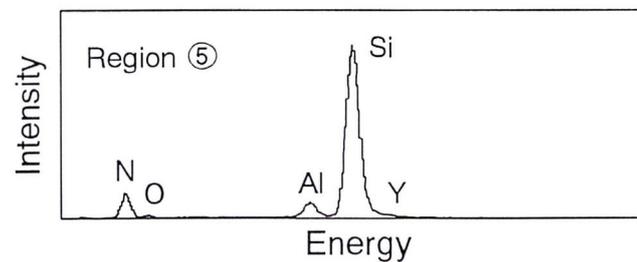
(a) SEM observation



(i) Region ③ marked in fig.4-5 (a)



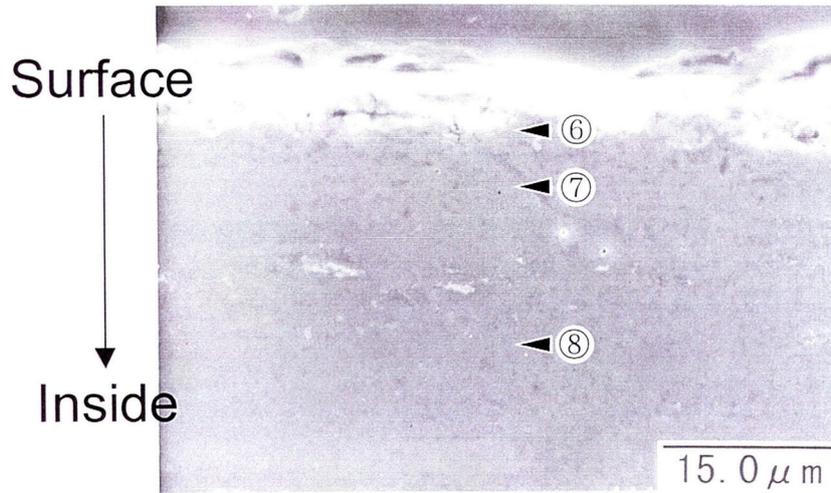
(ii) Region ④ marked in fig.4-5 (a)



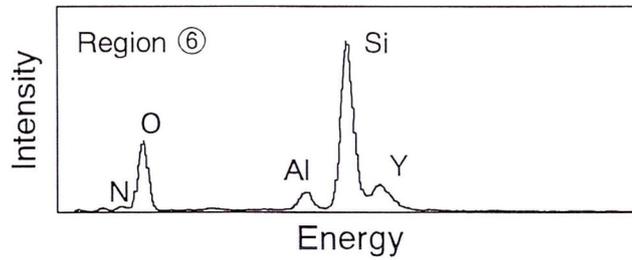
(iii) Region ⑤ marked in fig.4-5 (a)

(b) EDS spectra of regions ③, ④ and ⑤ in (a)

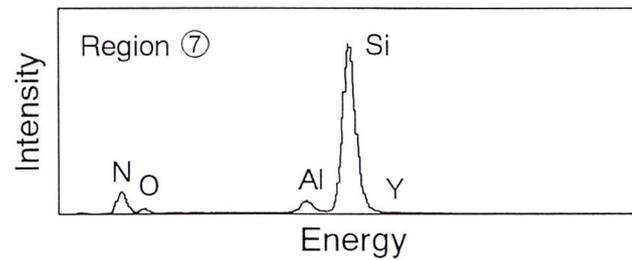
Figure 4-5 Concentration of constitutive elements in sample no.2
 ($\sigma_m = 55\text{MPa}$, $\sigma_a = 15\text{MPa}$, $\dot{\sigma} = 0.5\text{MPa/sec}$)



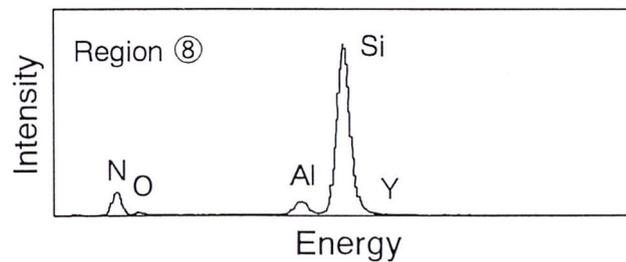
(a) SEM observation



(i) Region ⑥ marked in fig.4-6 (a)



(ii) Region ⑦ marked in fig.4-6 (a)



(iii) Region ⑧ marked in fig.4-6 (a)

(b) EDS spectra of regions ⑥, ⑦ and ⑧ in (a)

Figure 4-6 Concentration of constitutive elements in sample no.3
 ($\sigma_m = 50\text{MPa}$, $\sigma_a = 20\text{MPa}$, $\dot{\sigma} = 0.1\text{MPa/sec}$)

Table 4-2 Weight percent of constitutive elements in regions ① and ② in Fig.4-4(a)

	Weight percent (wt.%)	
	①	②
Si	56.36	59.44
N	29.83	30.39
O	2.56	1.84
Y	3.56	3.53
Al	4.69	4.80

Table 4-3 Weight percent of constitutive elements in regions ③, ④ and ⑤ in Fig.4-5(a)

	Weight percent (wt.%)		
	③	④	⑤
Si	44.05	50.87	59.50
N	4.87	15.94	30.12
O	38.62	22.38	2.06
Y	7.36	5.05	3.53
Al	5.11	5.76	4.78

Table 4-4 Weight percent of constitutive elements in regions ⑥, ⑦ and ⑧ in Fig.4-6(a)

	Weight percent (wt.%)		
	⑥	⑦	⑧
Si	41.15	60.91	60.70
N	5.51	28.67	30.33
O	33.27	4.35	2.37
Y	15.75	1.92	2.10
Al	4.32	4.16	4.50

じていることが確認される。これは 1300℃における動クリープ試験中、形成される酸化層が均一でないことを意味する。また、図 4-6 および表 4-4 より、試料 No.3 の試験片に対しても試料 No.2 の試験片におけると同様に試験片表面近傍に酸化層が形成されていることがわかる。

ところで、試料 No.3 の試験片においては試験片表面近傍に Y-rich 層が形成されるため、試験片の内部における Y は動クリープ試験前の試験片におけるそれより少なくなっている。Y は本供試材料において結晶粒界相成分を構成していると考えられる。したがって、これは 1300℃における動クリープ試験に伴い、試験片表面近傍と内部において結晶粒界相の組成が変化することを意味する。また、これは試験片内部において結晶粒内の容積に対して結晶粒界相の容積の占める割合が減少することを示唆している。

4 - 3 走査型電子顕微鏡による微視組織の観察

4 - 3 - 1 観察手順

SEM を用いて、試験を行っていない試験片および試験温度 1300℃の下で動クリープ試験を実施した試験片における結晶粒径の測定を実施した。以下に走査型電子顕微鏡用試料の作製手順を述べる。また、その説明図を図 4-7 に示す。

[作製手順]

- (a) 試験片から観察領域を切断する。
 - (b) 480～520℃に熱した水酸化ナトリウム中に(a)の試料を 30～60 秒程度浸す。
 - (c) 水に浸したまま 10～20 秒間、超音波洗浄器で加振する。
 - (d) アセトンに浸したまま 60～120 秒間、超音波洗浄器で加振する。
- (b)～(d)の作業を繰返し行うことによってアセトン中に Si_3N_4 粒子が一粒ずつ摘出される。

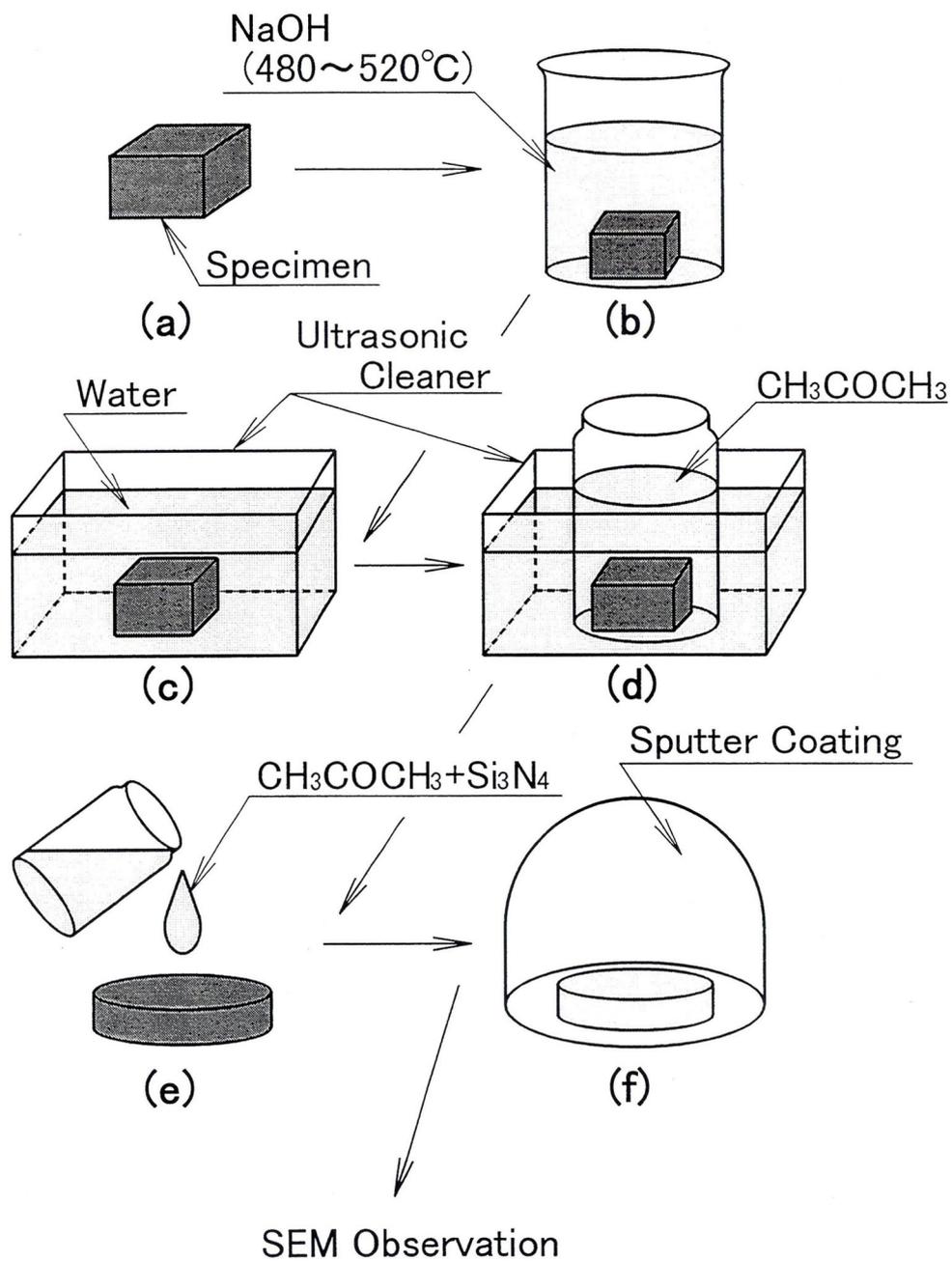


Figure 4-7 Preparation of sample for scanning electron microscope observations

(e) 結晶粒を含んだアセトンに SEM 試料台に滴下する。

(f) Si₃N₄ 粒子に金属被覆処理を施し，試料表面に導電性を付与する。

このようにして作製された試料に対して SEM 観察を実施した。表 4-

Table 4-5 Test conditions under which samples used for scanning electron microscope observations were creep-tested

Sample No	Test conditions			Fracture time t_f [hr]	
	Temperature [°C]	Mean stress σ_m [MPa]	Stress amplitude σ_a [MPa]		
4	Non-tested				
5	1300	60	10	0.1	85
6	1300	48	22	0.1	175

5に SEM 観察用試験片に対して実施した動クリープ試験の条件を示す。

4 — 3 — 2 観察結果

試験を行っていない試験片および試験温度 1300°C の下で動クリープ試験を実施した試験片から Si_3N_4 粒子を取出し、これらの SEM 観察を行うことによりこの粒の長径および短径寸法を測定した。一例として、図 4-8 に試験を行っていない試験片から得た Si_3N_4 粒子の SEM 観察結果を、本研究で採用した結晶粒寸法の表示法とともに示す。

図 4-9 および 4-10 にそれぞれ、各試料に対して測定した Si_3N_4 粒子

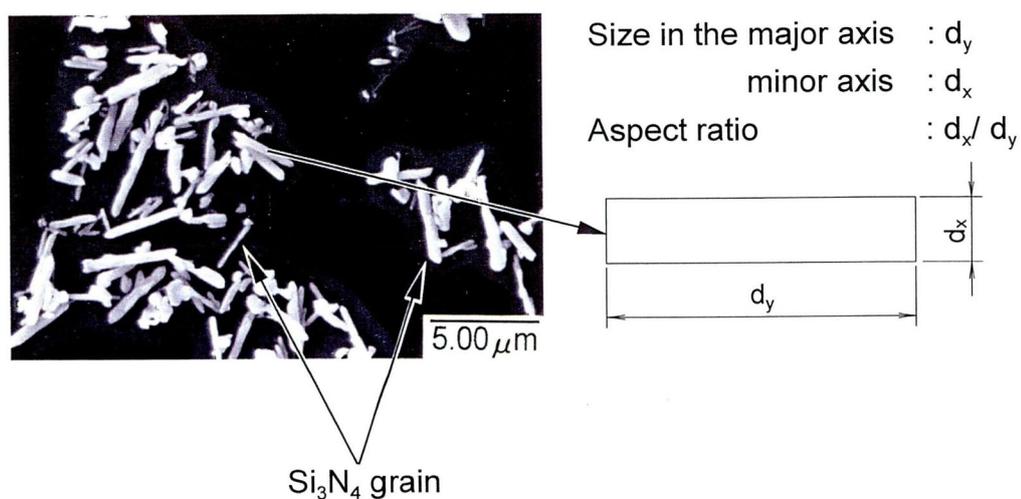


Figure 4-8 SEM observation of Si_3N_4 grain and its dimensions

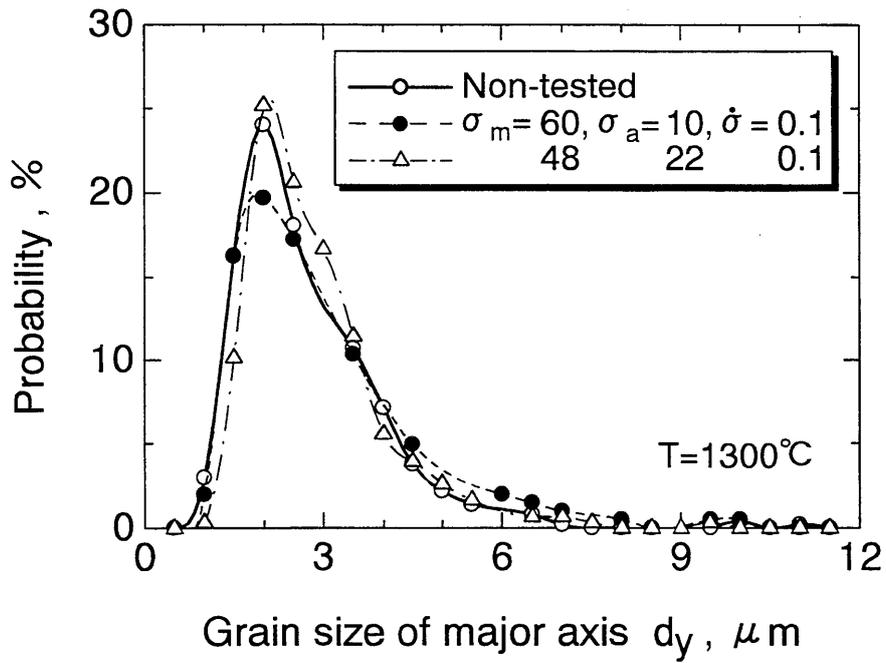


Figure 4-9 Distribution of major axis d_y in Si_3N_4 grain

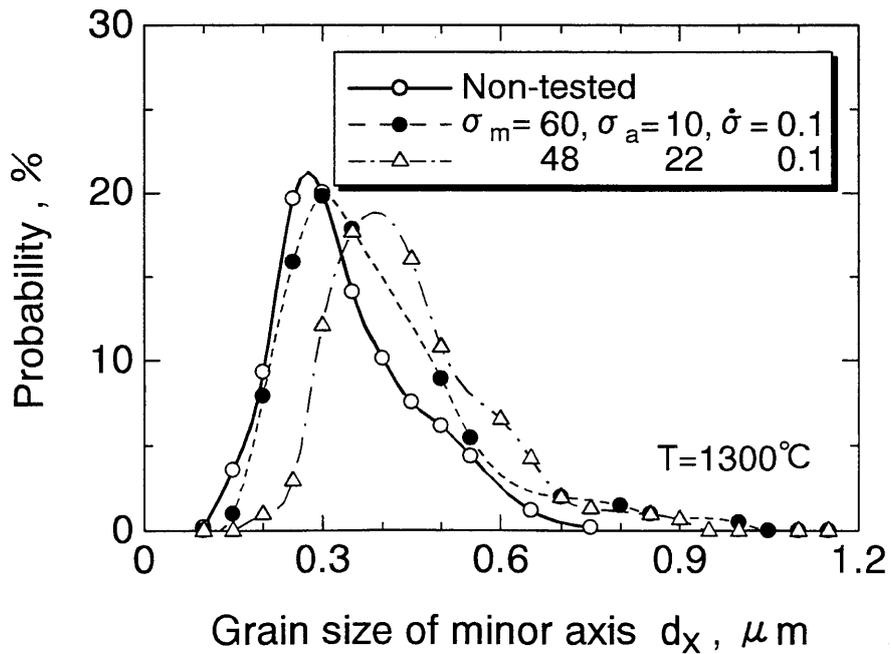


Figure 4-10 Distribution of minor axis d_x in Si_3N_4 grain

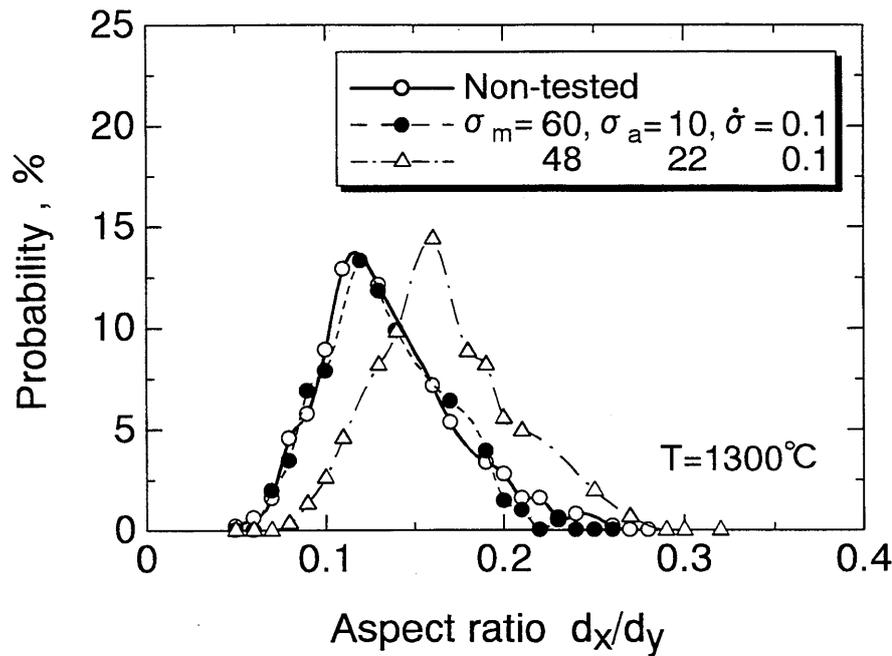


Figure 4-11 Distribution of aspect ratio d_x/d_y in Si_3N_4 grain

の長径 d_y および短径 d_x の分布を示す。また、図 4-11 にそのアスペクト比 d_x/d_y の分布を示す。図 4-9 によると、長径の分布は試験条件にほとんど影響を受けない。一方、図 4-10 によると、動クリープ試験の増加に伴い短径は増加する傾向にある。また、図 4-11 はこれに伴いアスペクト比が増加する傾向にあることを示している。これは 1300°C における動クリープ試験中、結晶粒が成長することを示唆している。

窒化けい素のアスペクト比は結晶粒界相の組成および状態に大きく依存するという報告がある^{(54),(55)}。前節で記述したように、本研究において 1300°C における動クリープ試験中、結晶粒界相の組成が変化することが確認されている。これらがこのような Si_3N_4 結晶粒の成長過程に影響を及ぼしたものと思われる。

4-4 高温動クリープ特性に及ぼす微視的構造の影響

第 3 章において、窒化けい素セラミックスは 1300°C における動クリ

ープ試験中，繰返し変形抵抗が増大することを述べた．この原因は以上の観察結果に基づいて次のように推察される．

- ① 4-2 節および 4-3 節で述べた現象に伴い，試験片内部において結晶粒界相の厚さが減少する．
- ② ①により Si_3N_4 結晶粒子間の摩擦抵抗が増大することにより材料の変形抵抗（繰返し変形抵抗）が増大する．

なお，この材料の高温強化機構として同様な仮説が他の研究者⁽⁵⁶⁾によって提案されている．

4 - 5 結 言

試験を行っていない試験片および前章で実施した動クリープ試験後の試験片に対して EDS による X 線分析を実施し，1300℃における動クリープ試験中に生じる試験片の組成の変化について調べた．さらに，SEM による観察から，1300℃における動クリープ試験による微視的構造の変化について調べた．得られた結果は次のように要約される．

(1) EDS を用いて，動クリープ試験前後における試験片の構成元素を調べた．その結果によると，試験時間の増加に伴い，試験片表面近傍において酸化層が形成されるとともに，この部分に Y-rich の領域が認められた．これより，動クリープ試験後の試験片の表面近傍と内部において結晶粒界相の構成元素が異なることがわかった．

(2) SEM を用いて，動クリープ試験前後における試験片の微視組織を観察した．その結果，1300℃における動クリープ試験中， Si_3N_4 結晶粒に横（短軸）方向の成長が生じることが示唆された．

(3) 窒化けい素セラミックスの高温下における繰返し変形抵抗の増大は，(1)および(2)の現象に伴い，試験片内部において結晶粒界の厚さが減少するため，結晶粒子間の摩擦抵抗が増大し，これによって材料の変形抵抗が増大することによって生じることが示唆された．

第 5 章 結 論

有限要素法による定常クリープ解析を実施し，窒化けい素セラミックスの突起部付高温引張クリープ試験片の最適設計手法を提案した．さらに，提案した手法により設計した突起部付試験片を用い，高温下で常圧焼結窒化けい素セラミックスの引張動クリープ試験を実施した．また，得られた動クリープ試験結果と先に得た静クリープ試験結果との比較，有限要素法による動クリープ解析，走査型電子顕微鏡（SEM）による微視組織の観察，およびエネルギー分散型 X 線分光装置（EDS）による試験片の構成元素の分析を通じて，常圧焼結窒化けい素セラミックスの高温クリープに関する総合的な評価を試みた．得られた結果を要約して以下に示す．

5 - 1 突起部付高温引張クリープ試験片の最適設計手法

突起部を有する窒化けい素セラミックス試験片に対して，高温引張クリープ試験と有限要素法による定常クリープ解析を通じて，突起部の影響を除いた定常クリープ構成式を決定する手法を提案した．さらに，この定常クリープ構成式に対して突起部付け根における応力・ひずみ集中の影響の補正を必要としない最適形状高温引張クリープ試験片を決定する手法を提案した．これより，1300℃における常圧焼結窒化けい素セラミックスの正しい定常クリープ構成式として以下の式を得た．

$$\dot{\epsilon}_c = 1.37 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad [\text{sec}^{-1}]$$

また，この式に対応する最適形状高温引張クリープ試験片として $B=3.0$ ， $L=5.0$ ， $R=1.0$ ， $t=3.0\text{mm}$ および $B=6.0$ ， $L=5.0$ ， $R=2.0$ ， $t=3.0\text{mm}$ の諸寸法を有する突起部付試験片を得た．

5 - 2 動クリープ試験結果

5 - 2 - 1 動クリープ変位の測定

1300°Cの試験温度下で常圧焼結窒化けい素セラミックスの動クリープ試験を、最大応力、応力速度一定の条件下で応力波形として三角波を用いて実施した。その際、レーザ変位計測装置を用いて試験片に生じる軸方向微小動クリープ変位の測定を行った。これより、突起部付試験片に生じる軸方向動クリープ変位を最大約 200 時間にわたり安定して測定できることを示した。また、このとき測定した軸方向動クリープ変位から得た動クリープ曲線の一部は、遷移クリープ状態を経た後、定常クリープ状態に達することがわかった。なお、このような定常クリープ状態への移行は σ_m が大きく σ_a が小さい試験条件下において生じ易い傾向にあった。

さらに、これらの動クリープ曲線から繰返し変形過程中的軸方向ひずみ幅の変化を調べた。これによると、軸方向ひずみ幅は繰返し数の増加に伴い連続的に減少し、繰返し変形抵抗が増大することがわかった。なお、このような軸方向ひずみ幅の減少は大きい応力振幅下において顕著な傾向にあった。

5-2-2 静クリープ試験結果との比較

ある与えられた試験時間中に定常動クリープひずみ速度と等しい定常クリープひずみ速度を生じさせる静クリープ応力として定義される等価応力 $\sigma_{eq,1}$ 、および動クリープひずみと等しい静クリープひずみを生じさせる静クリープ応力として定義される等価応力 $\sigma_{eq,2}$ を導入した。ここで、等価応力は次式で与えられた。

$$\begin{aligned} \sigma_{eq} &= \sigma_m I^{m/n} \\ &= \sigma_m \left[\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left\{ 1 + \frac{8(\sigma_a/\sigma_m)}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{(-1)^{i-1}}{(2i-1)^2} \sin(2i-1)\omega t \right\}^{\frac{n}{m}} d(\omega t) \right]^{\frac{m}{n}} \end{aligned}$$

同式中に含まれる係数 m および n に静クリープ試験より得た値を代入し、これを用いて動クリープ試験結果と静クリープ試験結果の比較を行った。これによると、両者のクリープ試験結果は、 $\log \dot{\epsilon}_{cmin}$ vs. $\log \sigma_{eq,1}$ 、

$\log t_f$ vs. $\log \sigma_{eq,2}$ および $\log t_f$ vs. $\log \dot{\epsilon}_{cmin}$ 線図上で、それぞれ、ほぼ、共通の 1 本の直線でほぼ表現でき、動クリープ変形が静クリープ変形と同様な機構で生じることが示唆された。なお、このとき、それぞれの直線は次式で与えられた。

$$\dot{\epsilon}_{cmin} = 1.37 \times 10^{-15} \sigma^{4.09} \quad [\text{sec}^{-1}]$$

$$t_f = 1.74 \times 10^{15} \sigma^{-7.37} \quad [\text{hr}]$$

$$t_f = 6.44 \times 10^{-12} \dot{\epsilon}_{cmin}^{-1.76} \quad [\text{hr}]$$

5 - 3 動クリープ解析

静クリープ有限要素法プログラムを拡張展開することにより動クリープ解析を実施した。このとき、動クリープ構成式として次式を用いた。

$$\epsilon_c = K \sigma_{eq}^n t^m$$

ただし、 K 、 m および n は静クリープ試験結果より算出される係数である。また、 σ_{eq} には前節で記述した式を用いた。

実験より得た $\dot{\epsilon}_{cmin} - \sigma_{eq,1}$ 関係と有限要素解析より得られたそれとを比較した結果、両者はほぼ一致することがわかった。これは突起部付試験片を用いて得た静クリープ構成式に基づき常圧焼結窒化けい素セラミックスの軸方向定常動クリープひずみ速度を推定できることを示している。

5 - 4 高温動クリープ変形により生じる微視的構造の変化

5 - 4 - 1 EDS による試験片の構成元素の分析

試験を行っていない試験片および試験温度 1300°C の下で動クリープ試験を実施した試験片に対して EDS による X 線分析を実施し、試験片の構成元素を調べた。その結果によると、1300°C における動クリープ試験中、試験片表面近傍に酸化層が形成されるとともに、この部分に Y (Yttrium)-

rich の領域が認められた。Y は本供試材料において結晶粒界成分を構成していると考えられることから、上述した分析結果は 1300℃における動クリープ中、試験片表面近傍と内部において結晶粒界相の組成が変化することを示している。

5-4-2 SEMによる結晶粒径の測定

SEM を用いて、試験を行っていない試験片および試験温度 1300℃の下で動クリープ試験を実施した試験片における結晶粒径の測定を実施した。これによると、1300℃における動クリープ試験に伴い、 Si_3N_4 結晶粒の短径が増大する傾向にあることがわかった。これは 1300℃における動クリープ試験中、結晶粒が成長することを示唆している。

5-4-3 微視的構造変化が高温動クリープ特性に及ぼす影響

1300℃における動クリープ試験中に生じる、窒化けい素セラミックスの繰返し変形抵抗の増大の原因として次のことが推察された。

- ① 1300℃における繰返し負荷により結晶粒界相の厚さが減少する。
- ② ①の現象に伴い Si_3N_4 結晶粒子間の摩擦抵抗が増大し、材料の変形抵抗（繰返し変形抵抗）が増大する。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、終始懇篤なる御指導ならびにご鞭撻を賜りました山口大学工学部 幡中憲治教授に心より感謝の意を表します。

山口大学工学部 飯野牧夫教授，河野俊一教授，後藤誠史教授，斎藤俊教授，合田公一助教授からは本論文に対する多くの有益な御教示を賜りました。ここに厚く御礼申し上げます。

本研究の開始当時より、終始変わらぬ御指導ならびに御援助を頂きました山口大学工学部 大木順司助手に深甚なる謝意を表します。

本研究で使用した試験片の材料提供および加工にご協力下さいました宇部興産（株）無機材料研究部の神徳泰彦氏，植木明氏に深く感謝致します。

試験装置の作製に対しては山口大学工学部の機械工場の職員の方々に御支援を頂きました。厚く御礼申し上げます。

また、X線分析および走査型電子顕微鏡観察にあたり、宇部興産（株）無機材料研究部の梶井紳二氏に大変お世話になりました。ここに謝意を表します。

さらに、実験の遂行およびデータの整理にあたり岐阜大学工学部 塩田祐久講師より種々の御指導を頂くとともに、原田守，宮本潤，上岡大衛，岸田昌俊，外山央諸氏をはじめとする、山口大学工学部機械工学科材料信頼性工学研究室の皆様にご支援を頂きました。深く感謝し御礼申し上げます。

最後に本論文をまとめるにあたり御支援を頂いたその他の方々に感謝します。

参考文献

- (1) 田中修, 工業材料, **40**-4(1992), 2-7.
- (2) 小島康一・神谷純生, セラミックス, **28**-10(1993), 1007-1021.
- (3) 宮田通彦・吉田真・前田辰巳, 工業材料, **39**-12(1991), 110-113.
- (4) 米屋勝利・安藤元英, セラミックス, **31**-4(1996), 311-315.
- (5) 前田良平, 工業材料, **40**-4(1992), 20-23.
- (6) Deeley, G.G., Herbert, J.M. and Moore, N.C., *Powder Met.*, **8**(1961), 145-151.
- (7) Richerson, D.W., *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **52**(1973), 560-569.
- (8) Tsuge, A., Nishida, K. and Komatsu, M., *J. Am. Ceram. Soc.*, **58**-2(1975), 323-326.
- (9) Grant, N.J. and Bucklin, A.G., *Trans. ASM.*, **42**(1950), 720-761.
- (10) 素木洋一, セラミック製造プロセスⅡ, (1978), 技報堂出版.
- (11) 素木洋一, セラミック製造プロセスⅢ, (1979), 技報堂出版.
- (12) 佐久間健人, 工業材料, **41**-4(1993), 2-5.
- (13) 河村英男, セラミックス, **31**-4(1996), 316-319.
- (14) Evans, A.G., *Int. Journ. of Fracture*, **16**(1980), 485-498.
- (15) Trantina, G.G., *J. Am. Ceram. Soc.*, **62**-2(1979), 377-380.
- (16) Jack Lin, C-K. and Socie, D.F., *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**-7(1991), 1511-1518.
- (17) Kossowsky, R., Miller, D.G. and Diaz, E.S., *J. Mater. Sci.*, **10**(1975), 983-997.
- (18) Ferber, M.K. and Jenkins, M.G., *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**-9(1992), 2453-2462.
- (19) 幡中憲治・塩田祐久, 機論, **61**-584, A(1995), 791-797.
- (20) Carroll, D.F., Wiederhorn, S.M. and Robert, D.E., *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**-9(1989), 1610-1614.
- (21) 榊田昌明・松井實, 日本セラミックス論文誌, **98**-1(1990), 83-92.
- (22) 田中道七・岡部永年・山元茂・中山英明・瀬川陽・藤井勉, 材料, **39**-447, (1990), 1692-1698.
- (23) Grathwohl, G., *Deformation of Ceramics Materials II*, (1984), 573-586.
- (24) Gürter, M., *Kernforschungszentrum Karlsruhe*, KFK-4874, (1991).
- (25) Robertson, A.G., Wilkinsom, D.S. and Caceres, C.H., *J. Am Ceram. Soc.*,

- 74-5**(1991), 915-921.
- (26) Wiederhorn, S.M., Roberts, D.E. and Chuang, T-J., *J. Am. Ceram. Soc.*, **71-7**(1988), 602-608.
- (27) Carroll, D.F. and Tressler, R.E., *J. Am. Ceram. Soc.*, **72-1**(1989), 49-53.
- (28) Ohji, T. and Yamauchi, Y., *J. Am. Ceram. Soc.*, **75-8**(1992), 2304-2307.
- (29) 井関孝善, セラミックス, **16-6**(1981), 457-461.
- (30) Quinn, G.D. and Braue, W.R., *J. Mater. Sci.*, **25**(1990), 4377-4392.
- (31) Bodur, C.T., Szabó, D.V. and Kromp, K., *J. Mater. Sci.*, **28**(1993), 2089-2096.
- (32) 河本洋・近藤拓也, 機論, **58-556**, A (1992), 2321-2327.
- (33) 尹相榮・檜村英彰・赤津隆・田邊靖博・山田恵彦・安田榮一,
日本セラミックス論文誌, **104-10**(1996), 939-944.
- (34) 横堀寿光・足立岳志・横堀武夫・阿部弘・高橋秀雄・中山淳・藤田浩之,
日本セラミックス論文誌, **98-9**(1990), 957-963.
- (35) 小川武史・広瀬素尚・阿部真也・中野典彦, 日本セラミックス論文誌,
103-11(1995), 1135-1141.
- (36) Lin, C.J., Socie, D.F., Xu, Y. and Zangvil, A., *J. Am. Ceram. Soc.*, **75-3**(1992),
637-648.
- (37) 村田雅人・高原渉・向井喜彦・佐藤純一・出口武司, 材料, **44-501**(1995), 710-714.
- (38) Dey, N., Socie, D.F. and Hsia, K.J., *J. Am. Ceram. Soc.*, **79-9**(1996),
2353-2363.
- (39) 山田嘉昭, 塑性・粘弾性／コンピュータによる構造力学講座Ⅱ - 2 - A,
(1972), 培風館.
- (40) 矢川元基・宮崎則幸, 有限要素法による熱応力・クリープ・熱伝導解析,
(1985), サイエンス社.
- (41) 幡中憲治・塩田祐久, 機論, **58-548**, A(1992), 653-660.
- (42) 幡中憲治・藤満達朗・安藤隆之・橘輝夫・中居嘉一郎, 機論, **55-512**,
A(1990), 773-780.
- (43) 幡中憲治・楊宏, 機講論, No.940-30(1994), 743-745.
- (44) 幡中憲治・塩田祐久・安藤隆之, 機論, **56-524**, A(1992), 997-1004.
- (45) 平修二・大谷隆一, 材料の高温強度論, (1980), オーム社.

- (46) 窯業協会編集委員会講座小委員会編, セラミックスの機械的性質,
(1979), 窯業協会.
- (47) 宮原信幸・武藤睦治・山石興平・老川恒夫, 材料, **41**(1992), 892-898.
- (48) 上野明・岸本秀弘・河本洋・浦幸雄, 材料, **39**(1990), 716-722.
- (49) Govila, R.K., *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**-1(1982), 15-21.
- (50) Knickerbocker, S.H., Zangvil, A. and Brown, S.D., *J. Am. Ceram. Soc.*,
68-4(1985), 99-101.
- (51) Singhal, S.C., *J. Mater. Sci.*, **11**(1976), 500-509.
- (52) Hasegawa, Y., Tanaka, H., Tsutsumi, M. and Suzuki, H., 窯業協会誌,
88(1980), 72-77.
- (53) Wu, C.C., Mckinney, K.R., Rice, R.W., Mcdonough, W.J. and Freiman, S.W.,
J. Mater. Sci., **16**(1981), 3099-3104.
- (54) 神崎修三・田端英世・高田忠信, 窯業協会誌, **91**(1983), 559-561.
- (55) 三島昌昭・佐藤裕・植木正憲, 日本セラミックス論文誌,
100-11(1992), 1323-1326.
- (56) 阪口修司・村山宣光・若井史博, 窯業協会誌, **95**(1987), 1219-1222.